

**Starke Kopplung, Lasing und
Manipulation der Lichtauskopplung
durch Mikrokavitäten verschiedener
Geometrien**

Starke Kopplung, Lasing und Manipulation der Lichtauskopplung durch Mikrokavitäten verschiedener Geometrien

Vom Fachbereich für Physik und Elektrotechnik
der Universität Bremen

zur Erlangung des akademischen Grades
Doktor der Naturwissenschaften
– Dr. rer. nat. –
genehmigte Dissertation

von

Dipl.-Phys. Moritz Seyfried
aus Balingen

1. Gutachter:	Prof. Dr. Jürgen Gutowski
2. Gutachter:	Prof. Dr. Detlef Hommel

Eingereicht am:	28.03.2012
Tag des Promotionskolloquiums:	11.07.2012

Für Janne

Abstract

During the last decades semiconductor microcavities have gained a lot of interest for technological applications as well as for fundamental research. This includes the use as basic component in vertical-cavity surface-emitting lasers (VCSELs), which are well established in data-communication. In addition they present a system for studying cavity quantum electrodynamic phenomena. Semiconductor quantum wells or quantum dots can be integrated as active media into the microcavity. The integration of quantum wells is interesting for laser applications and for entering the strong-coupling regime. The latter one being promising for a new kind of lasers with reduced laser threshold. By integrating quantum dots into pillar microcavities, their outcoupling efficiency can be enhanced via the Purcell effect making this system a very promising approach for the realization of efficient solid-state single-photon sources. These single-photon sources are a key element for applications in the field of quantum-information processing like, e.g., quantum cryptography.

In this thesis, microcavities with different geometries and different active media (quantum wells or quantum dots) are studied by microphotoluminescence (μ PL) experiments in real and k-space. By means of focused ion beam (FIB) milling the investigated structures are processed out of ZnSe- and GaN-based planar microcavities.

For the first time, an optical characterization of monolithically grown microcavities with three embedded ZnSe quantum wells is presented. Excitation density dependent measurements reveal a superlinear increase of the PL intensity. A laser threshold of 5 pJ is determined. Reflectivity measurements in real and k-space show clear indications of the lower and upper polariton branches demonstrating the strong coupling regime. For the Rabi splitting, a value of 19 meV is determined.

It is an efficient way of generating polarized single photons if the emission of a quantum dot is brought into spectral resonance with a polarized cavity mode. Therefore, the use of pillar microcavities with elliptical geometry is shown as an efficient way to lift the polarization degeneracy of the cavity modes. The efficiency of this method is studied by investigating the polarization degree of the emitted light. The emission of a single quantum dot is tuned into a polarized mode and out again by temperature variation allowing for a switching of the polarization state of the emitted light.

Connected microcavities with different pillar diameters were processed by FIB etching. Within these structures, the individual optical fields of the two cavities couple to each other leading to the evolution of new optical states. The optical field distribution is studied by means of an investigation of the far field emission. In this way, the two-dimensional field distribution of a structure with different pillar diameters was experimentally obtained for the first time, revealing the coexistence of localized as well as delocalized modes in the same structure. Furthermore, the internal mode distribution of elliptically shaped microcavities is investigated and an analogy to the coupled pillar microcavities is revealed. This analogy allows the treatment of elliptical microcavities as a system of coupled cavities with a rather large coupling constant.

The emission properties of monolithic GaN-based VCSEL-structures with an active layer of InGaN quantum dots are investigated. For these structures, an enhancement of the outcoupling efficiency of the quantum dot emission due to a coupling to the cavity modes was observed for the first time.

These results demonstrate the huge potential of quantum cavity electrodynamics and the possibility to tailor the emission properties of semiconductor quantum wells and dots by use of microcavities with different geometries.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Grundlagen	5
2.1	Breitlückige Halbleiter für den blau-grünen Spektralbereich	5
2.1.1	Selenid-Verbindungshalbleiter	5
2.1.2	Nitrid-Verbindungshalbleiter	8
2.2	Ladungsträgereinschluss in niederdimensionalen Strukturen	9
2.2.1	Quantenfilme	10
2.2.2	Quantenpunkte	11
2.2.3	Depopulationsmechanismen	15
2.3	Mikroresonatoren	16
2.4	Licht-Materie-Wechselwirkung in Mikroresonatoren	23
2.4.1	Schwache Kopplung	24
2.4.2	Starke Kopplung	27
3	Stand der Forschung	29
3.1	Breitlückige Halbleiter	29
3.1.1	Quantenpunkte	30
3.2	Vertikalresonatoren	35
3.2.1	Zirkulare Säulenresonatoren	37
3.2.2	Purcell-Effekt und Auskoppelleffizienz	39
3.2.3	Elliptische Säulenresonatoren	40
3.2.4	Gekoppelte Säulenresonatoren	41
3.3	Starke Kopplung und polaritonisches Lasing	42
4	Experimentelle Methoden	45
4.1	Herstellung und Struktur der Proben	45
4.1.1	Monolithische II-VI-Vertikalresonatoren	45
4.1.2	Vertikalresonatoren auf Basis von GaN	49
4.2	Mikrostrukturierung mittels fokussiertem Ionenstrahl	52
4.3	Mikro-Photolumineszenz	54
4.3.1	Fernfeld-Messungen	55
4.4	Simulationen	56
5	Photonisches Lasing und starke Kopplung in ZnSe-Quantenfilm-VCSELn	59
5.1	Stimulierte Emission in monolithischen ZnSe-Quantenfilm-VCSELn	59
5.2	Photonisches Lasing und starke Kopplung in monolithischen ZnSe-Quantenfilm-VCSELn	65
5.3	Zusammenfassung	75

6	Polarisierte Emission aus Mikroavitäten	77
6.1	Verspannte zirkulare Mikroavitäten	77
6.1.1	Modencharakteristika verspannter zirkularer Mikroavitäten	78
6.2	Elliptische Mikroavitäten	83
6.2.1	Modencharakteristika elliptischer Quantenfilm-Mikroavitäten	84
6.2.2	Polarisierte Emission einzelner Quantenpunkte	87
6.3	Zusammenfassung	91
7	Kopplungsphänomene in Mikroavitäten	93
7.1	Photonische Moleküle	93
7.1.1	Symmetrische photonische Moleküle	94
7.2	Elliptische Säulenresonatoren	101
7.3	Asymmetrische photonische Moleküle	103
7.4	Zusammenfassung	106
8	InGaN-Quantenpunkt-Mikroavitäten	109
8.1	Optische Eigenschaften der planaren Kavität	109
8.2	Resonante Moden in Säulenresonatoren	111
8.3	Zusammenfassung	115
9	Zusammenfassung	117
	Literaturverzeichnis	121
	Eigene Veröffentlichungen und Tagungsbeiträge	137
	Lebenslauf	143
	Danksagung	145

1 Einleitung

Die ständige Verfügbarkeit von Informationen, sei es über Telekommunikation, E-Mail oder das Internet hat die Gesellschaft in den letzten Jahrzehnten stark geprägt und verändert. Um den mit diesem fortwährenden Informationsaustausch verbundenen starken Anstieg des weltweiten Datenstroms bewältigen zu können, werden immer leistungsfähigere Wege für die Datenübertragung benötigt. Durch Anwendungen wie dem Online-Banking oder dem Zugriff auf online gespeicherte persönliche Daten steigt zudem gleichzeitig die Menge an sensiblen Daten, die bei der Übertragung gegenüber unbefugten Zugriff gesichert werden müssen.

Für die Informationsübertragung bieten Photonen aufgrund ihrer verschwindenden Masse und der Ausbreitung mit größtmöglicher Geschwindigkeit die ideale Grundlage. Zudem erlaubt die Verwendung von Multiplexing-Verfahren viele optische Signale gleichzeitig ohne gegenseitige Beeinflussung über ein einziges Glasfaserkabel zu übertragen, was einen sehr hohen Datenstrom ermöglicht. Aus diesen Gründen werden in der Datenübertragung die herkömmlichen Kupferleitungen auf immer weiteren Strecken zum Endverbraucher durch Glasfaserkabel ersetzt. Bezüglich der Übertragungssicherheit ist bereits seit Anfang des letzten Jahrhunderts mit Verfahren wie dem *One Time Pad-Protokoll* eine 100 %ig sichere Datenübertragung möglich [1, 2]. Der Schwachpunkt bei den bisherigen Verfahren liegt aber in der Übermittlung des Schlüssels, welcher ebenfalls auf sicherem Wege ausgetauscht werden muss.

Neben der Bewältigung immer größerer Datenströme zielen moderne Entwicklungen zudem auf eine zunehmende Miniaturisierung der Bauelemente ab, bei welcher immer mehr Funktionen auf gleichem Raum untergebracht werden und dadurch die Bauteile bei identischer Größe immer leistungsfähiger werden (Moore'sches Gesetz [3]). Die Hauptidee der neusten Entwicklungen ist dabei eine kostengünstige Integration von immer mehr optischen Komponenten wie Lichtquellen, Wellenleiter und Detektoren auf einem Chip [4]. Für zukünftige Technologien werden zusätzlich auch vollkommen neuartige Konzepte basierend auf der Quanteninformationsverarbeitung diskutiert und erforscht, mit welchen die Rechenleistung in vielen Bereichen noch einmal deutlich erhöht werden soll [5–8].

Zentrale Bestandteile vieler optischer Technologien sind einerseits die aktiven Materialien, in welchen das Licht erzeugt wird, und Mikrokavitäten, die bei dreidimensionalem Einschluss des Lichts eine gezielte Manipulation des optischen Feldes erlauben [9–11]. Für einen technologischen Einsatz sollten zukünftige Bauelemente möglichst effizient und ohne teure Kühlmittel wie flüssigem Helium betrieben werden können. Diese beiden Anforderungen an die aktiven Materialien können aufgrund der hohen Exzitonenbindungsenergie und Oszillatorstärke durch breitlückige Halbleiter mit Bandlücken von über 2 eV erfüllt werden. Je nach gewählter chemischer Zusammensetzung kann mit Verbindungen aus solchen Halbleitern der gesamte sichtbare Spektralbereich bis ins Ultraviolette abgedeckt werden. Bei einer Ausdehnung der aktiven Materialien von lediglich einigen wenigen Nanometern lässt sich die elektronische Zustandsdichte durch einen Einschluss der Ladungsträger in einer oder mehreren Dimensionen gezielt verändern und ausnutzen. Ein eindimensionaler elektronischer Einschluss in einer Ebene wird als Quantenfilm, ein dreidimensionaler Einschluss als Quantenpunkt bezeichnet. Bei den breitlückigen Halbleitern besitzen sowohl das Nitrid-basierte wie auch

das ZnSe-basierte Materialsystem eine gut entwickelte epitaktische Herstellung, welche das Wachstum der gewünschten Quantenfilme und Quantenpunkte erlaubt. Mit diesen beiden Materialsystemen ist zudem eine Emission im technologisch interessanten blau-grünen Spektralbereich möglich [12–14], welche einerseits zusammen mit den bereits verfügbaren blauen und roten Lasern für Display- oder Projektionssysteme interessant ist, und zum anderen in einem Absorptionsminimum von kostengünstig erhältlichen Plastikfasern liegt [15].

Eine Veränderung der optischen Zustandsdichte ist durch die Verwendung von Mikrokavitäten möglich, welche entweder bei planarer Kavität einen eindimensionalen optischen Einschluss aufweisen oder im Fall von aus der planaren Probe strukturierten Mikrosäulenresonatoren einen dreidimensionalen optischen Einschluss besitzen. Der optische Einschluss wird dabei durch eine Kombination aus Vielstrahlinterferenz in einer Abfolge dielektrischer Materialien mit unterschiedlichem Brechungsindex, sogenannten Bragg-Spiegeln, und der Totalreflexion beim Übergang vom Halbleitermaterial zur umgebenden Luft erreicht. Durch den optischen Einschluss wird das Licht auf einem kleinen Volumen in der Größenordnung von $1\text{ }\mu\text{m}^3$ eingeschlossen, was zu einer verstärkten Licht-Materie-Wechselwirkung führt. Wird der obere Spiegel der Mikrokavität mit einer gegenüber dem unteren Spiegel leicht reduzierten Reflektivität hergestellt, lässt sich eine erhöhte Lichtemission in den oberen Halbraum erreichen.

Die zwei Bragg-Spiegel der Mikrokavität, welche das lichtemittierende Medium umgeben, können zudem als Resonator dienen. Im Fall einer entsprechend hohen Güte der Kavität kann auf diese Weise eine senkrecht zur Oberfläche gerichtete stimulierte Emission erzeugt werden. Diese Art der Laser wird als VCSEL (*engl.: vertical-cavity surface-emitting laser*) bezeichnet und ist technologisch aufgrund eines annähernd zirkularen Strahlprofils und des vertikalen Monomodembetriebs sehr interessant. Zudem kann durch die beiden Spiegel die Lebensdauer eines emittierten Photons in der Kavität derart erhöht werden, dass die Absorption des Photons durch das aktive Medium wahrscheinlicher wird [16, 17]. Diese Absorption und anschließende erneute Emission des Photons ist charakteristisch für den Bereich der starken Kopplung. In diesem Bereich lassen sich neuartige physikalische Effekte beobachten. So wird für die bereits realisierten polaritonischen Laser [18], welche ohne eine Besetzungsinversion im herkömmlichen Sinn auskommen, zukünftig eine deutlich reduzierte Laserschwelle erwartet [19, 20]. Im Bereich der ZnSe-basierten VCSEL wurde bisher, trotz der theoretisch viel versprechenden Eigenschaften von ZnSe-Quantenfilmen, noch keine starke Kopplung bei monolithischen Strukturen erreicht.

Durch die Prozessierung von Säulenresonatoren mit asymmetrischen Querschnitt lässt sich die Polarisationsentartung der Moden aufheben, was zur Erzeugung einer polarisierten Emission ausgenutzt werden kann [21]. Bei Verwendung von Quantenpunkten als aktivem Material lässt sich so eine polarisierte Emission aus einzelnen Quantenpunkten erreichen [22], welche für Anwendungen in der Quanteninformationsverarbeitung sehr interessant ist.

Obwohl in den letzten Jahrzehnten große Fortschritte auf dem Gebiet der Kavitäts-Elektrodynamik erzielt wurden, gibt es weiterhin viele offene Fragen. So ist bisher noch ungeklärt, inwieweit die für die Quanteninformationsverarbeitung wichtigen und hauptsächlich auf dem GaAs-Materialsystem durchgeführten Untersuchungen zur polarisierten Emission aus einzelnen Quantenpunkten auf das für einen Betrieb bei höheren Temperaturen wesentlich besser geeignete ZnSe-Materialsystem übertragbar sind. Weiterhin ist das Kopplungsverhalten von Mikrokavitäten und der Einfluss auf die optischen Zustände insbesondere für asymmetrische Strukturen bisher kaum untersucht. Gerade diese Strukturen sind aber für die Kopplung von räumlich getrennten Quantenpunkten sehr interessant.

Aus diesen offenen Fragestellungen ergibt sich die Zielsetzung dieser Arbeit. Diese umfasst die Prozessierung von Mikrosäulenresonatoren mit unterschiedlichen Geometrien sowie die Charakterisierung und Ausnutzung der veränderten Licht-Materie-Wechselwirkung in diesen Strukturen sowohl für den Bereich der schwachen wie auch der starken Kopplung. Ein Aspekt ist dabei die Kontrolle des Emissionsverhaltens einzelner Quantenpunkte, insbesondere hinsichtlich des Polarisationszustands des emittierten Lichts. Weiterhin soll durch Studien zum Kopplungsverhalten von optischen Feldern in Mikrokavitäten mit speziellen Geometrien geklärt werden, inwieweit sich solche Strukturen für eine Kopplung von räumlich mehrere Mikrometer entfernten Quantenpunkten eignen.

In Kapitel 5 werden die **stimulierte Emission** und die **starke Kopplung** in ZnSe-Quantenfilm-Mikrokavitäten vorgestellt. Von der Verwendung binärer ZnSe-Quantenfilme, die eine sehr geringe inhomogene Verbreiterung der Emission besitzen, verspricht man sich mehrere Vorteile gegenüber der Verwendung von ternären oder quaternären Quantenfilmen. So soll im Regime der schwachen Kopplung die Laserschwelle des photonischen Lasings verringert werden. Zudem wird erwartet, dass sich mit einer geringen Anzahl an Quantenfilmen das Regime der starken Kopplung erreichen lässt. Die notwendigen **Grundlagen** für das Verständnis der beschriebenen physikalischen Vorgänge werden in Kapitel 2 erläutert, bevor in Kapitel 3 ein Überblick über den **Stand der Forschung** gegeben wird.

Ein weiterer Aspekt dieser Arbeit sind die optischen Eigenschaften von Quantenpunkten, welche in Mikrokavitäten mit lateralem optischen Einschluss eingebettet wurden. Der Aufbau der Proben, deren Strukturierung sowie die zur optischen Charakterisierung verwendeten **Methoden** werden dabei in Kapitel 4 geschildert. In Kapitel 6 werden zwei verschiedene Methoden zur Erzeugung einer **polarisierten Emission aus Mikrokavitäten** behandelt. Beide Methoden basieren auf der Verwendung von Säulenresonatoren, welche mittels fokussiertem Ionenstrahlätzen aus der planaren ZnSe-basierten Probe hergestellt wurden. Eine Analyse der Abstrahlcharakteristik lässt für beide Fälle eine Aussage über den Polarisationsgrad des emittierten Lichts und damit über die Effektivität der jeweiligen Verfahren zu.

Durch die Verbindung von zwei Säulenresonatoren können die optischen Felder in den beiden Mikrokavitäten miteinander wechselwirken, was sowohl zur Erzeugung von verschränkten Photonen wie auch zur Kopplung von Quantenpunkten über das optische Feld interessant ist. Zur Charakterisierung dieser **Kopplungsphänomene in Mikrokavitäten** werden in Kapitel 7 optische Studien an ZnSe-basierten Strukturen mit unterschiedlich starker Kopplung gezeigt. Eine Untersuchung der Abstrahlung im Fernfeld liefert dabei Einsicht in die interne Verteilung des optischen Feldes. Anschließend wird eine spezielle Geometrie präsentiert, welche die Koexistenz von lokalisierten und delokalisierten optischen Moden aufweist, was sie für zukünftige Anwendungen in der Quanteninformationsverarbeitung interessant macht.

Als Alternative zum ZnSe-basierten Materialsystem stehen Nitrid-Verbindungen zur Verfügung. Aus diesem Materialsystem hergestellten Mikrokavitäten weisen bisher jedoch noch eine deutlich geringere strukturelle Qualität im Vergleich zu ZnSe-basierten Mikrokavitäten auf. In Kapitel 8 werden erstmals die optischen Eigenschaften von monolithisch hergestellten **InGaN-Quantenpunkt-Mikrokavitäten** präsentiert und auf Hinweise einer verstärkten Auskopplung der Quantenpunktemission durch Ankopplung an die Kavitätsmoden untersucht.

Die Arbeit schließt mit einer **Zusammenfassung** der wesentlichen Ergebnisse in Kapitel 9 ab.

2 Grundlagen

In diesem Kapitel sollen die zum Verständnis der Arbeit notwendigen physikalischen Grundlagen erläutert werden. Dazu werden zuerst die verwendeten breitlückigen Verbindungshalbleiter auf ZnSe- und GaN-Basis vorgestellt, bevor auf die optischen Eigenschaften der daraus hergestellten Quantenfilme und Quantenpunktschichten eingegangen wird. Darauf folgt ein Abschnitt zu den Charakteristika von Mikroresonatoren mit eingebetteten Quantenfilmen und Quantenpunktschichten. Anschließend wird der Einfluss eines dreidimensionalen optischen Einschlusses in Säulenresonatoren diskutiert, welcher zu speziellen photonischen Eigenschaften führt. Abschließend wird noch auf die grundlegenden Unterschiede der Licht-Materie-Wechselwirkung in den beiden möglichen Bereichen der schwachen beziehungsweise starken Kopplung eingegangen.

2.1 Breitlückige Halbleiter für den blau-grünen Spektralbereich

In Halbleitern wird die Wellenlänge eines emittierten Photons bei der Interbandrekombination hauptsächlich durch den Bandabstand zwischen Leitungs- und Valenzband bestimmt. Um Lichtemission im blau-grünen Spektralbereich zu erzielen, finden daher breitlückige Verbindungshalbleiter mit einer Bandlücke größer als 2 eV Verwendung. Dabei konzentriert sich die Forschung auf die beiden Materialsysteme auf Basis von ZnSe und GaN, die auch in dieser Arbeit zum Einsatz kommen. Im Folgenden wird ein kurzer Überblick über beide Materialsysteme hinsichtlich ihrer grundlegenden und für das Verständnis der Arbeit wichtigen Eigenschaften gegeben.

2.1.1 Selenid-Verbindungshalbleiter

Kristallstruktur

Die II-VI-Verbindungshalbleiter kristallisieren in ihrer stabilen Phase hauptsächlich als kubisches Zinkblende-Gitter (abgeleitet aus dem Trivialnamen für ZnS) oder in der hexagonalen Wurtzit-Struktur. So liegen die Halbleiter ZnSe und ZnS bei moderaten Temperaturen und Drücken stabil in der Zinkblende-Struktur vor. Diese besitzt eine kubische Kristallstruktur, welche sich aus zwei ineinander liegenden kubisch-flächenzentrierten Bravais-Gittern jeweils einer Atomsorte zusammensetzt. Die beiden Gitter sind entlang der Raumdiagonalen der kubischen Zelle um $1/4$ der Diagonalenlänge gegeneinander verschoben. Insgesamt besitzt jedes Atom damit in tetraedrischer Anordnung vier Nachbaratome der jeweils anderen Sorte. Die Wurtzit-Struktur, welche die stabile Phase von CdSe und CdS darstellt, kann als hexagonal dichteste Kugelpackung (*engl.: hexagonal close-packed, hcp*) des einen Materials beschrieben werden, bei welchem jede zweite Tetraederlücke mit Atomen der zweiten Sorte besetzt ist. Wie im Fall der Zinkblende-Struktur ist auch bei der Wurtzit-Struktur jedes Atom von vier Atomen der anderen Sorte tetraedrisch umgeben. Der Unterschied zwischen den

beiden kristallographischen Anordnungen liegt hauptsächlich in der Schichtfolge begründet, welche bei der Zinkblende-Modifikation eine Zwischenschicht mehr besitzt. Teilweise hängt die Kristallstruktur zudem von der Wachstumstemperatur ab, so geht ZnS bei Temperaturen von über 1020 °C von der Zinkblende- in die Wurtzit-Struktur über [23]. Eine Ausnahme in der Kristallstruktur bildet die Verbindung MgS, welche aufgrund der hohen Ionizität in der kubisch-flächenzentrierten Kochsalz-Struktur kristallisiert. Die Magnesiumionen besetzen alle Oktaederlücken in einer kubisch-flächenzentrierten Packung von Schwefelatomen.

Beim epitaktischen Wachstum auf einem Substrat mit Zinkblende-Struktur kristallisieren jedoch sowohl MgS wie auch CdSe bis zu einer gewissen kritischen Dicke d_c in Zinkblende-Struktur, wobei der Wert der Schichtdicke d_c vom jeweiligen Material und den Wachstumsparametern abhängt und für ein GaAs-Substrat von 140 nm bei MgS [24] bis zu einigen Mikrometern bei CdSe reicht [25].

Geht man von den bisher beschriebenen binären (AC) zu ternären ($A_xB_{1-x}C$) Verbindung über, so sagt Vegards Regel eine nahezu lineare Änderung der Gitterkonstante des ternären Materials a^{ABC} mit der Zusammensetzung voraus [26]:

$$a^{ABC}(x) = x \cdot a^{AC} + (1 - x) \cdot a^{BC}. \quad (2.1)$$

Hier bezeichnen a^{AC} und a^{BC} die Gitterkonstanten der beiden binären Verbindungen AC bzw. BC.

Als kostengünstig erhältliches Substrat für ZnSe-basierte Strukturen bietet sich GaAs an, welches ebenfalls in der Zinkblende-Struktur kristallisiert und lediglich eine Gitterfehlانpassung von 0.27 % gegenüber ZnSe aufweist [27]. Die Gitterkonstanten der hier diskutierten Materialien sind in Abbildung 2.1 vergleichend gegeneinander aufgetragen.

Bandstruktur

Bei den betrachteten Verbindungshalbleitern CdSe, ZnSe, ZnS und MgS liegen sowohl das Valenzbandmaximum wie auch das Leitungsbandminimum am Γ -Punkt ($\vec{k} = 0$) im Zentrum der ersten Brioullin-Zone. Dementsprechend zählen sie aufgrund ihrer hohen Übergangswahrscheinlichkeit der strahlenden Rekombination zu den für die Optoelektronik wichtigen direkten Halbleitern für den blauen und grünen Spektralbereich. Die Bindung der II-VI-Halbleiter besteht aus einem kovalenten und einem ionischen Anteil, wobei der jeweilige Anteil durch die Ionizität f_i ($f_i=1$ für rein ionische Bindung) beschrieben wird. Stellt man sich die Bindung als rein ionisch vor, so lässt sich die Ausbildung von Valenz- und Leitungsband erklären: Das Leitungsband geht im Wesentlichen aus den s-Orbitalen der metallischen Kationen hervor und ist zweifach bezüglich des Gesamtdrehimpulses $J=1/2$ entartet. Aus den p-Orbitalen des Anions bildet sich das Valenzband aus, welches eine kompliziertere Struktur besitzt und für ZnSe in insgesamt drei Bänder aufgespalten ist. Sowohl das Schwerlochband ($J=3/2$, $m_J=\pm 3/2$) wie auch das Leichtlochband ($J=3/2$, $m_J=\pm 1/2$) sind zweifach entartet und liegen energetisch um etwa 0.43 eV [28] über dem durch die Spin-Bahn-Wechselwirkung abgesenkten split-off-Band ($J=1/2$, $m_J=\pm 1/2$), welches daher für optische Betrachtungen vernachlässigt werden kann. Schwer- und Leichtlochband sind in einem unverspannten Kristall am Γ -Punkt entartet. Interne Verspannungen, wie sie oftmals beim pseudomorphen Wachstum auftreten, können jedoch zu einer um mehrere meV stärkeren energetischen Absenkung des Leichtlochbandes gegenüber dem Schwerlochband führen und somit die Energieentartung aufheben [29, 30].

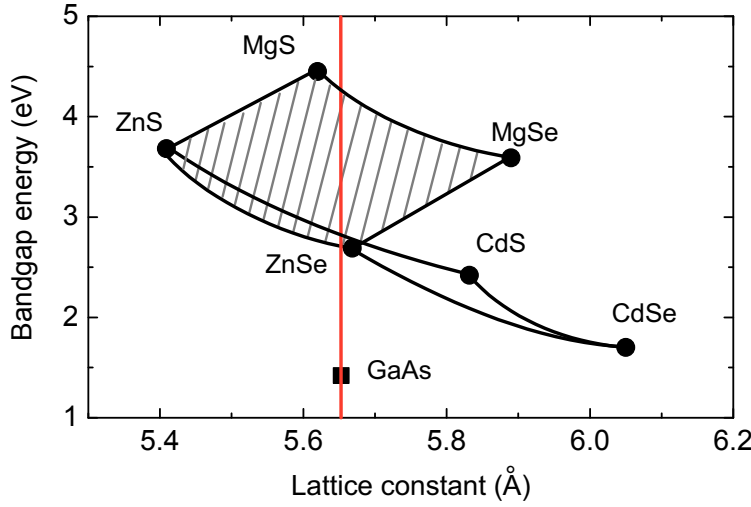


Abbildung 2.1: Energie der Bandlücke am Γ -Punkt für verschiedene, für diese Arbeit relevante binäre II-VI-Verbindungshalbleiter sowie GaAs bei 300 K. Die Auftragung erfolgt gegen die Gitterkonstante. Die Verbindungslinien zwischen den binären Verbindungen geben die Bandlücken der jeweiligen ternären Materialien an, das Bowingverhalten ist nur angedeutet und nicht exakt. Daten aus [13].

Die Bandlückenenergien E_g der in dieser Arbeit verwendeten Verbindungshalbleiter sind in Abbildung 2.1 gegen die jeweilige Gitterkonstante aufgetragen und reichen bei Raumtemperatur von $E_g^{\text{CdSe}} = 1.66 \text{ eV}$ [31] bis zu $E_g^{\text{MgS}} = 4.45 \text{ eV}$ [32]. Damit kann fast der gesamte sichtbare Spektralbereich einschließlich des technologisch interessanten blau-grünen Bereichs durch die II-VI-Verbindungshalbleiter abgedeckt werden. Die Bandlücken der ternären Verbindungen sind durch die Verbindungslinien (im Allgemeinen keine Geraden) zwischen den binären Materialien angedeutet. Eine besondere Stellung besitzt der quaternäre Verbindungshalbleiter MgZnSSe , welcher in Abbildung 2.1 durch die schraffierte Fläche innerhalb der Verbindungsgeraden gekennzeichnet ist. In dieser Verbindung ist es möglich, durch eine separate Kontrolle der Magnesium- und Schwefelanteile die Bandlücke bei fester Gitterkonstante in gewissen Grenzen zu variieren und damit ein exakt gitterangepasstes Wachstum zum oft als Substrat verwendeten GaAs zu ermöglichen. Allerdings liegen in einer quaternären Verbindung oftmals lokale Fluktuationen der chemischen Zusammensetzung vor. Diese Fluktuationen führen zu lokal leicht unterschiedlichen Bandlückenenergien, welche sich nachteilig auf die elektrischen und optischen Eigenschaften auswirken können.

Wie bereits erwähnt zeichnen sich die II-VI-Verbindungshalbleiter durch eine hohe Ionizität der Bindung aus. Diese resultiert, im Vergleich zu den III-V-Verbindungen, in einer kleineren Dielektrizitätskonstanten, welche die feldschwächenden Effekte der dielektrischen Polarisierung beschreibt, sowie in einer stärkeren Ankopplung an Phononen. Für das wasserstoffähnliche Wannier-Exziton, welches im Gegensatz zu den z. B. in organischen Halbleitern vorkommenden Frenkel-Exzitonen nur schwach an einem Gitterplatz lokalisiert und daher relativ frei beweglich ist, ergibt sich im Fall eines Volumenhalbleiters eine Exzitonen-Bindungsenergie E_X^B von

$$E_X^B = \frac{e^2}{8\pi\epsilon\epsilon_0 a_B^*} \quad \text{mit} \quad a_B^* = \frac{m_0\epsilon}{\mu} \cdot a_0 \quad . \quad (2.2)$$

Die Dielektrizitätskonstante ϵ geht sowohl direkt als auch über den Exzitonen-Bohrradius a_B^* in die Exzitonen-Bindungsenergie ein. e bezeichnet die Elementarladung, m_0 die freie Elektronenmasse und μ die reduzierte effektive Masse des Exzitons. Typische Werte der Exzitonen-Bindungsenergie für das II-VI-Materialsystem liegen im Bereich von 20 - 30 meV [27] und damit in der gleichen Größenordnung wie die thermische Energie bei Raumtempera-

tur von etwa 26 meV. Folglich sind in den II-VI-Strukturen, im Gegensatz zu GaAs-basierten Strukturen mit $E_X^B(\text{GaAs}) \approx 4.2 \text{ meV}$, noch bei Raumtemperatur exzitonische Effekte zu erwarten. Die thermische Leitfähigkeit von II-VI-Verbindungen ist hingegen wegen der starken Ionizität geringer ($\text{ZnSe } 0.19 \text{ Wcm}^{-1}\text{K}^{-1}$ bei 300 K [33]) als bei GaAs-Verbindungen ($\text{GaAs } 0.55 \text{ Wcm}^{-1}\text{K}^{-1}$ bei 300 K [34]) und muss beim Design von Bauteilen entsprechend berücksichtigt werden.

Mit steigender Temperatur nimmt bei allen Halbleiter die Bandlücke ab. Verursacht wird diese Abnahme durch eine Kombination aus der thermischen Ausdehnung des Kristalls und der temperaturabhängigen Elektron-Phonon-Wechselwirkung. Dabei führt letztere zu einer quadratischen Veränderung bei tiefen Temperaturen und zu einer linearen Abnahme bei höheren Temperaturen. Die Ausdehnung des Kristalls spielt hauptsächlich bei höheren Temperaturen eine Rolle und führt dort ebenfalls zu einer linearen Abnahme der Bandlücke bei steigender Temperatur [35, 36]. Zusammengefasst ergibt sich damit eine Temperaturabhängigkeit der Bandlücke E_g , die bei höheren Temperaturen ab etwa 100 K linear verläuft. Für den nicht-linearen Temperaturbereich unterhalb 100 K stehen zwei Ausdrücke zur Verfügung. Zum einen ein von *Varshni* vorgeschlagener empirischer Verlauf mit $E_g(0)$ als Bandlücke bei einer Temperatur von null Kelvin und den materialspezifischen Konstanten α und β [35]:

$$E_g(T) = E_g(0) - \frac{\alpha T^2}{T + \beta}. \quad (2.3)$$

Zum anderen schlugen *Viña et al.* 1984 einen halbempirischen Ausdruck für die Temperaturabhängigkeit der Bandlücke vor, welcher auf dem Bose-Einstein-Besetzungsfaktor basiert [37, 38]:

$$E_g(T) = E_g(0) - \frac{\kappa}{\exp(\Theta/T) - 1}. \quad (2.4)$$

Dabei gehen die effektive Phonontemperatur Θ und die Elektron-Phonon-Wechselwirkung κ mit in die Berechnung ein.

2.1.2 Nitrid-Verbindungshalbleiter

Neben den II-VI-Verbindungshalbleitern besitzen auch die meisten Gruppe-III-Nitride eine breite Bandlücke, welche eine Emission im blau-grünen Spektralbereich ermöglicht. Zudem weisen Nitrid-Verbindungshalbleiter ebenfalls die für optische Anwendungen wichtige direkte Bandlücke auf. Durch das Mischen der binären Halbleiter AlN mit einer Raumtemperatur-Bandlücke von $E_g^{\text{AlN}} = 6.2 \text{ eV}$, GaN mit $E_g^{\text{GaN}} = 3.4 \text{ eV}$ und InN mit $E_g^{\text{InN}} = 0.7 \text{ eV}$ [39, 40] lässt sich auch hier die Bandlücke des entstehenden ternären Materials gezielt zwischen den Werten der beiden beteiligten binären Halbleiter einstellen. Jedoch ergeben sich insbesondere bei großen Unterschieden in den Gitterparametern Mischungslücken, in welchen eine Phase-separation auftritt. Im Fall von InGaN bilden sich dabei durch spinodale bzw. binodale Entmischung große indiumreiche und kleine indiumarme Bereiche aus. Diese Entmischung kann zur Herstellung von InGaN-Quantenpunkten mit einem Indiumgehalt von etwa 20-30 % ausgenutzt werden (siehe Abschnitt 4.1.2).

Die Nitrid-basierten Verbindungshalbleiter liegen bei Raumtemperatur thermodynamisch stabil in der Wurtzit-Struktur vor [41], welche in der kristallographischen c-Richtung abwechselnd aus Ebenen aus Metallatomen und Stickstoffatomen besteht. Dies führt zusammen mit

der fehlenden Symmetrie in c-Richtung zu einer stark ausgeprägten Polarität des Kristalls. Diese Polarität kann zu einer spontanen Polarisierung führen und spielt eine wichtige Rolle beim Verständnis sowohl elektrischer wie auch optischer Eigenschaften von Nitridverbindungen [42]. Zudem können geringe Verspannungen bereits große piezoelektrische Felder verursachen und beeinflussen dadurch die optischen und elektrischen Eigenschaften (z. B. Quantum Confined Stark effect (QCSE) bei niederdimensionalen Strukturen).

Ein Vorteil der Nitrid-Verbindungshalbleiter gegenüber den ZnSe-basierten Materialien ist die wesentlich höhere thermische Leitfähigkeit (GaN: $1.3 \text{ Wcm}^{-1}\text{K}^{-1}$ [43], AlN: $2.85 \text{ Wcm}^{-1}\text{K}^{-1}$ [44], beide für 300 K), welche für einen besseren Abtransport der erzeugten Wärme sorgt und damit höhere Anregungsdichten erlaubt.

2.2 Ladungsträgereinschluss in niederdimensionalen Strukturen

Epitaktisch lassen sich heutzutage Verbindungshalbleiter in vielfältiger Weise aufeinander abscheiden. Wird dabei ein Material mit einer geringeren Bandlücke von einem Material mit einer höheren Bandlücke umgeben, so wird die Bewegung der Ladungsträger eingeschränkt. Diese Einschränkung auf das Material mit der geringeren Bandlücke hat eine Quantisierung der Energieniveaus der Ladungsträger zur Folge. Als charakteristische Größe, ab welcher mit dem Einsetzen von solchen quantenmechanischen Effekten zu rechnen ist, dient die de-Broglie Wellenlänge

$$\lambda_B = \frac{h}{\sqrt{3m_{eff}k_B T}} \quad , \quad (2.5)$$

in welche das Plancksche Wirkungsquantum h , die materialspezifische effektive Masse m_{eff} , die Boltzmann-Konstante k_B sowie die Temperatur T eingehen. Als typische Längenskala ergibt sich hieraus für breitlückige Halbleiter ein Wert von etwa 10 nm.

Eine wichtige Konsequenz des räumlichen Einschlusses der Ladungsträger ist die veränderte Zustandsdichte $D(E)$ von niederdimensionalen Strukturen, welche einen entscheidenden Einfluss auf die optischen Eigenschaften besitzt. Allgemein lässt sich die Zustandsdichte unter Annahme einer sphärischen Dispersionsrelation für $E(\vec{k})$ mit der reduzierten Masse m^* für eine Beschränkung der Bewegung auf d Dimensionen mit der Länge L berechnen [45]:

$$D^{(d)}(E) = \frac{2}{(2\pi)^d} \frac{1}{L^{3-d}} \frac{\pi^{d/2}}{(d/2 - 1)!} \left(\frac{2m^*}{\hbar^2} \right)^{d/2} E^{d/2-1} \quad . \quad (2.6)$$

Für den Volumenhalbleiter mit $d=3$ ergibt sich daraus die bekannte wurzelförmige Zustandsdichte:

$$D^{3D}(E) = \frac{1}{2\pi^2} \left(\frac{2m^*}{\hbar^2} \right)^{3/2} \sqrt{E} \quad . \quad (2.7)$$

2.2.1 Quantenfilme

Ein zweidimensionaler Einschluss von Ladungsträgern in einer Ebene kann durch die Einbettung einer dünnen Halbleiterschicht mit geringerer Bandlücke in ein Material mit höherer Bandlücke realisiert werden. Solche Strukturen werden als Quantenfilme bezeichnet. Dieser Einschluss hat eine Einschränkung der Ladungsträgerbeweglichkeit in Wachstumsrichtung zur Folge, welche zur Quantisierung der erlaubten Impuls- und damit auch Energiezustände führt. Zusammen mit der freien Beweglichkeit in der Ebene führt dies zur Ausbildung sogenannter Subbänder. Nach Formel 2.6 ergibt sich für eine Reduktion der Beweglichkeit auf $d = 2$ Dimensionen eine stufenförmige Zustandsdichte

$$D^{2D}(E) = \frac{m^*}{\pi \hbar^2 L_x} \sum_l \Theta(E - E_l) \quad , \quad (2.8)$$

in welcher $\Theta(x)$ die Heavyside-Funktion und $l \in \mathbb{N}$ die Quantenzahl darstellen. E_l sind die Energien der quantisierten Zustände im Quantenfilm. In Abbildung 2.2 sind vergleichend die Energieabhängigkeiten der Zustandsdichten eines Quantenfilms, eines Volumenhalbleiters sowie eines Quantenpunktes aufgetragen.

Die veränderte Zustandsdichte der Quantenfilm-Strukturen wirkt sich stark auf deren optische Eigenschaften aus. So ist für eine hohe optische Verstärkung eine Besetzungsinversion von Energiezuständen mit einer hohen Zustandsdichte notwendig. Im Volumenmaterial kann dies nur erreicht werden, indem zuerst alle niedrigeren Energiezustände aufgefüllt werden. Im Quantenfilm ist ein solches Auffüllen jedoch nicht notwendig, da hier zum untersten energetischen Zustand bereits eine hohe Zustandsdichte korrespondiert (siehe Abbildung 2.2). Folglich kann bei Quantenfilmen eine stimulierte Emission bereits mit wesentlich weniger Ladungsträgern als im Fall des Volumenhalbleiters erreicht werden. Entscheidend für Anzahl der Ladungsträger im Leitungsband ist das Produkt $D(E) \cdot f(E)$ aus Zustandsdichte und Fermiverteilung $f(E)$, wobei letztere die Besetzungswahrscheinlichkeit eines Zustandes mit Ladungsträgern angibt. Bei Quantenfilmen erreicht dieses Produkt, im Gegensatz zum Volumenhalbleiter, sein Maximum für den energetisch niedrigsten Besetzungszustand und weist spektral eine schmalere Verteilung auf. Entsprechend ergibt sich die maximale Verstärkung aus dem untersten besetzten Energieniveau [46].

Die veränderte Zustandsdichte der Quantenfilme wirkt sich auch auf die Temperaturabhängigkeit der Laserschwelle aus. Im herkömmlichen Volumenmaterial wird die Temperaturabhängigkeit der Laserschwelle auf die mit zunehmender Temperatur breitere energetische Verteilung der Ladungsträger zurückgeführt. Da diese Verteilung für die Quantenfilme, aufgrund der stufenförmigen Zustandsdichte, geringer ist, besitzen diese auch eine geringere Temperaturabhängigkeit der Laserschwelle [45].

Die Übergänge zwischen den unterschiedlichen Materialien an der Grenzfläche der Quantenfilme sind jedoch nicht immer abrupt. Daher kann es zu lokalen Unterschieden in der Dicke sowie zu lokalen Fluktuationen in der Zusammensetzung der Verbindungshalbleiter kommen. Beide Effekte können zur Ausbildung von Lokalisierungszentren für Ladungsträger und damit für Exzitonen führen. Diese Variationen führen zu einer inhomogenen Verbreiterung der Lumineszenzspektren und sind insbesondere bei tiefen Temperaturen und geringen Anregungsdichten für die Lumineszenz bestimmend.

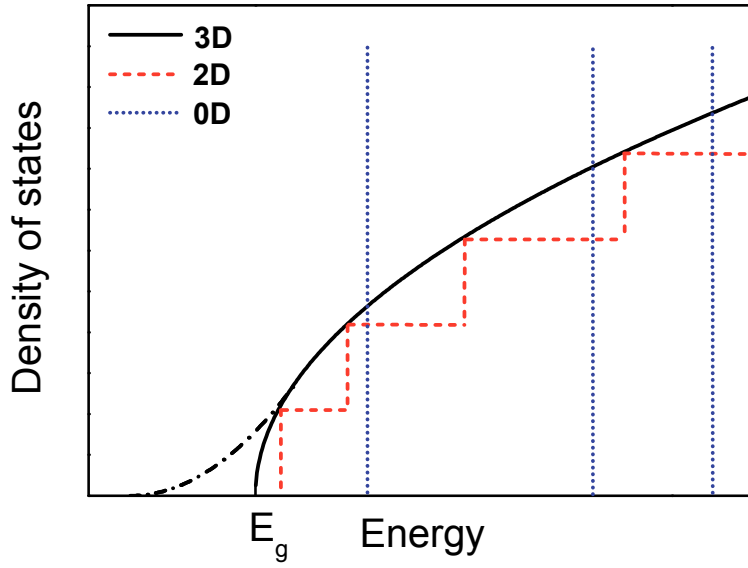


Abbildung 2.2: Zustandsdichte für Volumenhalbleiter (durchgezogene Linie), Quantenfilm (gestrichelt) und Quantenpunkte (gepunktet). Der strichpunktierte exponentielle Ausläufer unterhalb der Bandlücke des Volumenhalbleiters beruht auf Verunreinigungen und Unordnung im Kristallgitter. Nach [47].

2.2.2 Quantenpunkte

Eine Einschränkung der Ladungsträgerbeweglichkeit in allen drei Raumrichtungen führt zu einem Einschluss der Ladungsträger auf einen Punkt, weshalb solche Systeme auch als Quantenpunkte bezeichnet werden. In der Realität besteht ein Quantenpunkt jedoch immer noch aus einigen hundert bis tausend Atomen. Formel 2.6 folgend ergibt sich für einen quantenmechanischen Einschluss in allen $d = 3$ Raumrichtungen mit der Deltafunktion $\delta(x)$ und den Quantenzahlen $l, m, n \in \mathbb{N}$ eine Zustandsdichte von

$$D^{0D}(E) = \frac{2}{L_x L_y L_z} \sum_{l,m,n} \delta(E - E_{l,m,n}) \quad , \quad (2.9)$$

bei welcher nur noch diskrete Zustände erlaubt sind (siehe Abbildung 2.2). Diese diskreten Zustände führen bei der Rekombination von Elektron-Loch-Paaren folglich auch zu diskreten Emissionsenergien, vergleichbar mit der spektral scharfen Emission aus einzelnen Atomen. Wegen dieser Analogie der diskreten Zustände und spektral scharfen Übergänge werden Quantenpunkte oftmals auch als künstliche Atome bezeichnet. Ein entscheidender Unterschied der Quantenpunkte zu freien Atomen ist jedoch die Wechselwirkung mit der Umgebung. Während das freie Atom isoliert von der Umgebung ist und somit in keinerlei Wechselwirkung steht, sind epitaktisch hergestellte Quantenpunkte stets in ein umgebendes Material eingebettet. Diese Einbettung führt dazu, dass die Aktivierungsenergie, die notwendig ist, um Ladungsträger aus dem Quantenpunkt zu entfernen, mit wenigen zehn bis knapp 200 meV wesentlich geringer ist als die entsprechende Ionisationsenergie von mehreren eV eines freien Atoms [48?].

Elektron-Loch-Paare in Quantenpunkten

Der starke räumliche Einschluss von Elektron-Loch-Paaren in einem Quantenpunkt führt zu einer veränderten Exzitonenenergie im Quantenpunkt gegenüber der im Volumenhalbleiter. Die Bindung von Elektron und Loch ist im Quantenpunkt durch den räumlichen Einschluss aufgezwungen, eine Umwandlung in freie Elektronen und Löcher ist im Quantenpunkt nicht

möglich. Daher handelt es sich im Quantenpunkt nicht um Exzitonen im eigentlichen Sinn, der Einfachheit halber werden diese Komplexe im Folgenden dennoch als Exzitonen bezeichnet. Je nach Verhältnis von Exziton-Bohrradius a_B^* zur räumlichen Ausdehnung des Quantenpunktes lassen sich drei grundlegend verschiedene Fälle unterscheiden [49]: Ist der Radius des Quantenpunktes r_{QD} wesentlich größer als der Exziton-Bohrradius ($r_{QD} \gg a_B^*$), liegt nur ein relativ schwacher Einschluss der Ladungsträger vor. Folglich wird dieser Bereich als das Regime des schwachen Einschlusses bezeichnet. In diesem Bereich bleibt der Charakter des Exzitons als Quasiteilchen erhalten, welches als Gesamtes innerhalb des Quantenpunktes eingeschlossen ist. Die Exzitonenenergie des Quantenpunktes liegt daher auch nur geringfügig über der Exzitonenenergie des Volumenhalbleiters [50]. Ist die Ausdehnung des Quantenpunktes deutlich kleiner als der Exziton-Bohrradius ($r_{QD} \ll a_B^*$), liegt ein starker quantenmechanischer Einschluss vor. In diesem Fall wird die Coulomb-Energie gegenüber der Energieänderung durch den elektronischen Einschluss vernachlässigbar. Die Exzitonenenergie kann sich in diesem Bereich um Werte von bis zu 1 eV von der im Volumenmaterial unterscheiden [50]. Als dritte Möglichkeit existiert der Bereich, in welchem Quantenpunkt-Radius und Exzitonen-Bohrradius vergleichbar sind ($r_{QD} \approx a_B^*$). Für diesen Bereich kann die Coulomb-Wechselwirkung störungstheoretisch betrachtet werden und liefert dann für die Exzitonenenergie [51]:

$$E_1 = \frac{1}{2\mu} \left(\frac{\hbar\pi}{r_{QD}} \right)^2 - 1.786 \cdot \frac{e^2}{\epsilon r_{QD}} - 0.248 \cdot E_X^B, \quad (2.10)$$

wobei E_X^B für die Exzitonenenergie des Volumenmaterials steht (Formel 2.2). Der erste Term bezieht sich auf die Summe der Grundzustandsenergien der Einzelteilchenzustände, der zweite Term auf die Coulomb-Anziehung von Elektron und Loch und der dritte auf die räumliche Wechselwirkung der beiden Teilchen [49].

Selbstorganisiert hergestellte Quantenpunkte besitzen typische Abmessungen von wenigen Nanometern in Wachstumsrichtung und wenigen zehn Nanometern in der Wachstumsebene. Damit weisen sie mindestens in einer Richtung vergleichbare Abmessungen wie der Exzitonen-Bohrradius auf (CdSe $a_B^* \approx 5.65 \text{ nm}$ [52]). Entsprechend befinden wir uns bei allen in dieser Arbeit vorgestellten Proben im Gültigkeitsbereich von Formel 2.10.

Angeregte Zustände und Multiexzitonen

Treffen Photonen mit einer größeren Energie als die der Bandlücke auf einen Halbleiter, so können sie absorbiert werden und Ladungsträger erzeugen. Im Fall einer Absorption der Photonen in der eine Quantenpunktschicht umgebenden Matrix können die entstehenden Ladungsträger in die Quantenpunkte relaxieren und dort Elektron-Loch-Paare generieren. Je nach Intensität der Anregung können dabei verschiedene gebundene Exzitonenkomplexe in den Quantenpunkten entstehen. Bei einer geringen Anregungsdichte, welche typischerweise für die Proben-Grundcharakterisierung in dieser Arbeit verwendet wurde, relaxiert meist nur ein Elektron-Loch-Paar gleichzeitig in einen Quantenpunkt und besetzt den ersten angeregten Zustand (s-Zustand). Bei diesen geringen Anregungsdichten zerfällt das Elektronen-Loch-Paar, bevor weitere Ladungsträger in den Quantenpunkt relaxieren können. Wird die Anregungsdichte erhöht, so wird die Wahrscheinlichkeit für den Einfang weiterer Ladungsträger im Quantenpunkt größer. Bei einem zusätzlichen Ladungsträger zum Exziton spricht man von

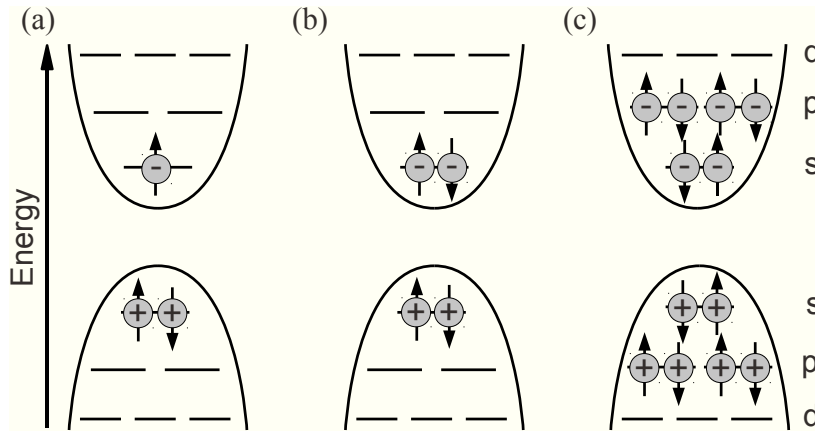


Abbildung 2.3:

Schematische Besetzung der Zustände eines Quantenpunktes mit Elektronen und Löchern für den Fall eines positiv geladenen Trions (a), eines Biexzitons (b) sowie einer Besetzung der p-Niveaus (c).

einem Trion, je nach zusätzlicher Ladung von einem negativen (ein zusätzliches Elektron) oder einem positiven (ein zusätzliches Loch). Der Fall von zwei eingeschlossenen Elektron-Loch-Paaren wird als Biexziton bezeichnet. Dieses kann unter Aussendung eines Photons in ein Exziton übergehen. Die Bindung des Biexzitons kann in einem Quantenpunkt durch den starken elektronischen Einschluss aufgezwungen sein, so dass die Bindungsenergie im Quantenpunkt auch negative Werte annehmen kann [53]. Im Volumenhalbleiter würde ein Biexziton mit negativer Bindungsenergie durch den fehlenden elektronischen Einschluss sofort dissoziieren. In Abbildung 2.3 ist schematisch die Besetzung der Quantenpunktzustände für die beiden Fälle eines positiv geladenen Trions (a) und eines Biexzitons (b) gezeigt. Zusätzlich zur Absorption in der die Quantenpunkte umgebenden Matrix können die Photonen auch im Quantenpunkt selbst absorbiert werden. Aufgrund des im Vergleich zur umgebenden Matrix deutlich geringeren Volumens der Quantenpunkte ist, bei ausreichender Photonenenergie, eine Absorption in der Matrix jedoch wesentlich wahrscheinlicher.

Bei einer weiteren Erhöhung der Anregungsdichte können im Quantenpunkt auch energetisch höher liegende Zustände besetzt werden. In Analogie zu den Zuständen im Atom werden die Zustände eines Quantenpunktes mit den Buchstaben s, p, d... (entsprechend den Quantenzahlen 1, 2, 3...) bezeichnet. Eine solche Besetzung der p-Niveaus eines Quantenpunktes ist schematisch in Abbildung 2.3 (c) dargestellt.

Die Bindungsenergien von Biexzitonen und Trionen weichen in der Regel um charakteristische Werte von der Bindungsenergie eines einzelnen Exzitons ab. Die entsprechenden individuellen Emissionslinien aus den jeweiligen Zerfällen erlauben in Photolumineszenzuntersuchungen daher die Identifikation der Exzitonenzustände. Da das Biexziton im Gegensatz zum einfachen Exziton zwei Photonen zur Erzeugung benötigt, lässt sich dieses zudem durch die annähernd quadratische Abhängigkeit der Lumineszenzintensität des biexzitonischen Zerfalls von der Anregungsleistung, welche im Gegensatz zur linearen Abhängigkeit des Exzitons steht, nachweisen.

Bei nicht-resonanter Anregung werden oftmals Ladungsträger an Defekten oder Oberflächenzuständen der Benetzungsschicht eingefangen, welche zu einer temporären Variation des elektrischen Feldes in der Umgebung des Quantenpunktes führen können. Die damit verbundene zeitliche Veränderung der spektralen Position der Emissionslinie des Quantenpunktes führt bei zeitintegrierten Messungen zu einer Verbreiterung der Emissionslinie. Dieser Effekt wird als spektrale Diffusion bezeichnet [54].

Einzelphotonenemission

Insbesondere für Anwendungen in der abhörsicheren Datenübertragung sind Einzelphotonenquellen, welche sich durch die Emission von maximal einem Photon pro Zeiteinheit auszeichnen, ein wichtiges Schlüsselement. Eine mögliche Realisierung einer solchen Einzelphotonenquelle basiert auf der Ausnutzung der charakteristischen und spektral voneinander getrennten Emission der verschiedenen exzitonischen Komplexe in einem Quantenpunkt.

Die typische Lebensdauer eines Exzitons im Quantenpunkt liegt bei einem rein strahlenden Zerfall im Bereich mehrerer hundert Pikosekunden [55–58]. Bei einer optischen Anregung des Quantenpunktes mit Femtosekunden-Laserpulsen ist die Lebensdauer des Exzitons damit wesentlich länger als die Dauer des anregenden Pulses sowie die Lebensdauer der Ladungsträger im umgebenden Halbleitermaterial. Dies bedeutet, dass pro Laserpuls maximal ein Photon pro Quantenpunkt durch einen Exzitonenzерfall erzeugt werden kann. Ein weiteres Photon kann frühestens durch den nächsten Laserpuls erzeugt werden. Photonen aus den strahlenden Zerfällen von Trionen, Biexzitonen oder angeregten Zuständen desselben Quantenpunktes besitzen geringfügig abweichende Energien und lassen sich somit spektral leicht aus dem Gesamtemissionsspektrum filtern.

Diese Eigenschaft führt dazu, dass niemals gleichzeitig zwei Photonen mit identischer Energie aus einem Quantenpunkt emittiert werden können. Das Emissionsverhalten wird daher als abstandshaltend bezeichnet. Räumlich benachbarte Quantenpunkte, welche ebenfalls angeregt werden, besitzen wegen ihrer abweichenden Größe, Form und chemischen Zusammensetzung meist eine spektral unterschiedliche Emissionsenergie des Exzitons oder können durch eine entsprechende Probenstrukturierung, z. B. die Verwendung von Mikrosäulenresonatoren mit einer reduzierten Anzahl an Quantenpunkten, entfernt werden.

Das Emissionsverhalten einer Strahlungsquelle lässt sich durch die Wahrscheinlichkeit, mit der zu einer Zeit τ nach der Emission eines Photons erneut ein Photon emittiert wird, charakterisieren. Hierfür wird die normierte Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung

$$g^{(2)}(\tau) = \frac{\langle E^*(t) E(t) E^*(t+\tau) E(t+\tau) \rangle}{\langle E^* E \rangle^2} = \frac{\langle I(t) I(t+\tau) \rangle}{\langle I \rangle^2} \quad (2.11)$$

verwendet, welche die Korrelation zwischen den Intensitäten $I = E^*E$ zu den Zeiten t und $t + \tau$ angibt, wobei $\langle \rangle$ für eine Betrachtung der Mittelwerte steht. In zeitaufgelösten Experimenten lässt sich $g^{(2)}(t)$ durch den sogenannten *Hanbury-Brown* und *Twiss*-Versuchsaufbau nachweisen [59–62]. Dabei wird das Signal durch einen 50/50-Strahlteiler in zwei identische Teilstrahlen aufgeteilt und jeweils auf hochsensitive Photodioden gebracht, welche mit einer hohen Zeitauflösung ausgelesen werden. Aus dem Signal der beiden Photodioden ergibt sich dann die Korrelationsfunktion zweiter Ordnung, welche Aussagen über die Emissionscharakteristik zulässt. Für den Fall einer gepulsten optischen Anregung eines Quantenpunktes ergibt sich ein charakteristischer, in Abbildung 2.4 gezeigter Verlauf, welcher für den Zeitpunkt $t = 0$ eine deutliche Unterdrückung der Mehrphotonenemission aufweist. Das abstandshaltende Verhalten der Photonen, d. h. die Emission von maximal einem Photon pro anregendem Puls, wird auch als antibunching bezeichnet. Ein solches Verhalten kann auch durch die Abschwächung eines gepulsten Lasers auf eine mittlere Emission von einem Photon pro Puls nicht erreicht werden. Bei einer derartigen Abschwächung werden statistisch oftmals gar kein oder auch zwei oder mehr Photonen pro Puls emittiert und nur in etwa 37 % der Fälle exakt ein Photon pro Puls [58].

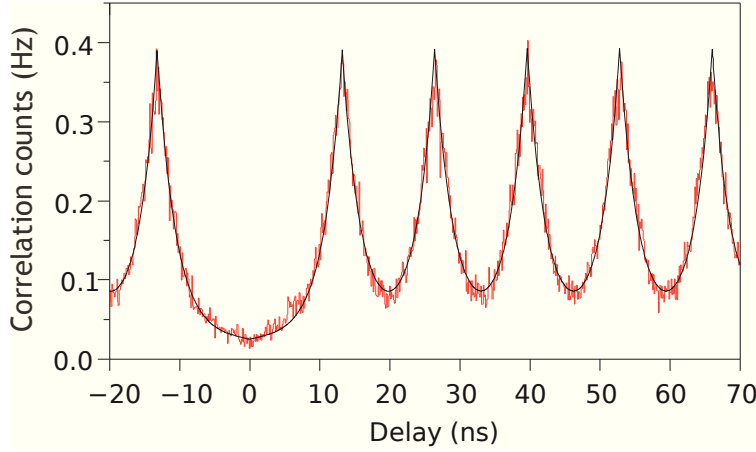


Abbildung 2.4: Anzahl der Korrelationen für einen mit 76 MHz ($\bar{t} = 13.2 \text{ ns}$) gepulst angeregten InAs/GaAs-Quantenpunkt in Abhängigkeit von der Verzögerung τ ($T = 5 \text{ K}$). Aus [63].

Solche Einzelphotonenquellen sind ein Schlüsselement für Anwendungen in der Quanteninformationsverarbeitung wie z. B. der Quantenkryptographie. Diese Form der Kryptographie basiert auf dem quantenmechanischen Prinzip der Veränderung des Photons durch den Messprozess. Wird die Verbindung abgehört, wird das Photon detektiert und daher verändert, was sich letztlich in einer höheren Fehlerrate der übertragenen Informationen bemerkbar macht und durch entsprechende Fehlerprotokolle nachgewiesen werden kann.

Quantenpunkt-Ensemble

Herstellungsbedingt bestehen alle in dieser Arbeit untersuchten Proben aus Quantenpunktschichten, in welchen viele Quantenpunkte enthalten sind. Durch das selbstorganisierte Wachstum (siehe Abschnitte 4.1.1 und 4.1.2) weisen die Quantenpunkte eine leicht unterschiedliche chemische Zusammensetzung, Größe und Form auf. Diese Fluktuationen führen zu einer Variation der Energieniveaus der Quantenpunkte und folglich zu einer inhomogenen Verbreiterung der Emissionsenergien des Quantenpunktensembles auf typischerweise 50–160 meV [64–67]. Die Emission aus einer Quantenpunktschicht überdeckt somit oftmals spektral einen größeren Bereich als die Emission aus einer Quantenfilmstruktur. Da sowohl die Größe der Quantenpunkte, deren chemische Zusammensetzung wie auch die Form rein zufällig verteilt sind, lässt sich aufgrund der Vielzahl an beteiligten Quantenpunkten die Emission des Quantenpunktensembles in guter Näherung durch eine Gaußverteilung beschreiben.

Befindet sich in der Flanke des Ensembles ein besonders intensiv emittierender Quantenpunkt, können bei entsprechender spektraler Auflösung unter Umständen trotz der Vielzahl an Emissionslinien Studien zum Emissionsverhalten dieses einzelnen Quantenpunktes durchgeführt werden.

2.2.3 Depopulationsmechanismen

In einem idealen Quantenpunkt liegt sowohl das nächst höhere Energieniveau $|p\rangle$ wie auch das Energieniveau des umgebenden Barrierenmaterials $|b\rangle$ so weit über dem untersten Energieniveau $|s\rangle$ (Abbildung 2.5), dass die Energiedifferenz ΔE zwischen diesen Niveaus wesentlich größer ist als die thermische Energie bei Raumtemperatur ($\Delta E \gg k_B T$). Für die Temperaturabhängigkeit der strahlenden Lebensdauer $\tau_l(T)$ eines solchen idealen Quantenpunktes,

welche umgekehrt proportional zur Linienbreite ist, ergibt sich mit [68]

$$\tau_l^{-1}(T) = \tau_l^{-1}(0) \left(1 + \exp\left(-\frac{\Delta E}{k_B T}\right) \right)^{-1} \quad (2.12)$$

ein temperaturinsensitives Verhalten. Wegen der δ -förmigen Zustandsdichte erfolgt zudem keine Verbreiterung der Energieniveaus. Durch die Abnahme der Bandlücke mit zunehmender Temperatur findet lediglich eine spektrale Verschiebung der Quantenpunktemission zu größeren Wellenlängen statt.

In realen Quantenpunkten ist der elektronische Einschluss jedoch nicht perfekt und es liegt stets eine Wechselwirkung mit dem Barrierenmaterial vor. Durch die thermische Aktivierung von nicht-strahlenden Rekombinationsprozessen mit steigender Temperatur nimmt im realen Quantenpunkt daher die Intensität der Lumineszenz mit zunehmender Temperatur ab.

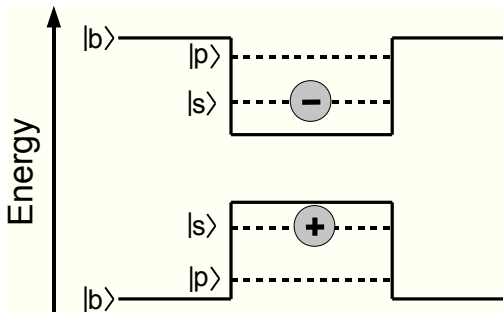


Abbildung 2.5: *Energieniveaus eines Quantenpunktes.*

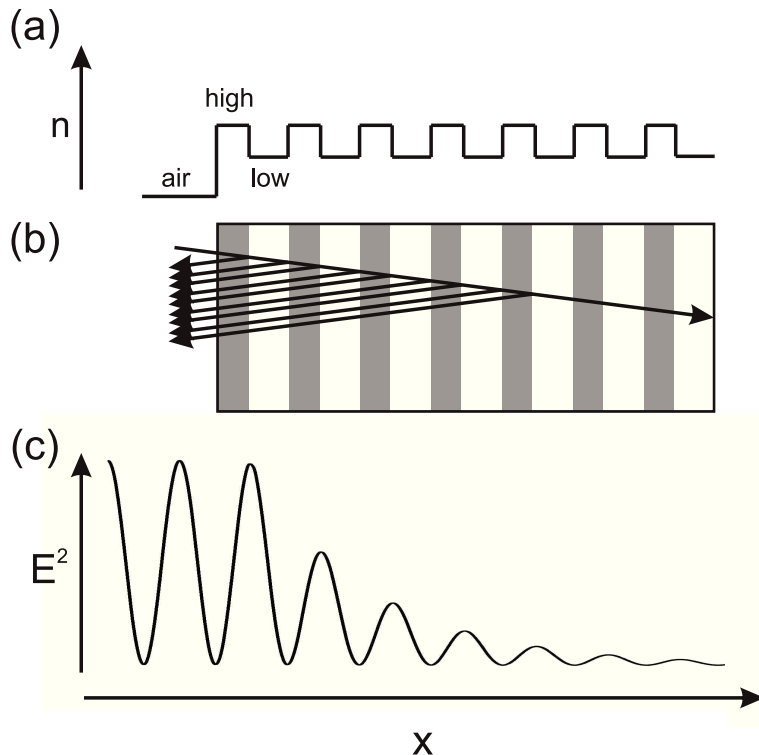
aus dem Quantenpunkt gerechnet werden kann. Bei höheren Temperaturen werden die Ladungsträger ins umliegende Barrierenmaterial angeregt, so dass die strahlende Rekombination teilweise aus dem Barrierenmaterial und nicht mehr ausschließlich aus dem Quantenpunkt erfolgt. Dementsprechend sind bei höheren Temperaturen kaum noch Effekte des Quantenpunktes zu beobachten.

Bei hohen Anregungsdichten spielt auch die Ladungsträger-Ladungsträger-Wechselwirkung eine entscheidende Rolle. Einerseits kann die emittierte Energie einer strahlenden Rekombination einen weiteren Ladungsträger dazu bewegen, den Quantenpunkt zu verlassen, wodurch das Grundniveau entleert wird [70]. Andererseits kann die Wechselwirkung durch Auger-artige Prozesse auch zu einem effektiveren Einfang der Ladungsträger in den Quantenpunkt führen [71]. Dabei geht ein Ladungsträger direkt aus der Benetzungsschicht in den Grundzustand des Quantenpunktes über und gibt die freiwerdende Energie an einen Ladungsträger in der Umgebung ab.

2.3 Mikroresonatoren

Eine mögliche Anwendung der Quantenfilme und Quantenpunktschichten ist die Verwendung als aktives Material in Laserstrukturen. Zum Erreichen einer Lasertätigkeit ist außer dem aktiven Material zusätzlich noch ein Resonator notwendig, durch welchen die Verweildauer der Photonen derart verlängert wird, dass sie angeregte Ladungsträger zur stimulierten Emission bewegen können. An der Laserschwelle gleicht die Materialverstärkung

$$g_{th} = \alpha - \frac{1}{2l} \ln(R_1 R_2) \quad , \quad (2.13)$$

**Abbildung 2.6:**

(a) Verlauf des Brechungsindex über die Struktur. (b) Der einfallende, hier der besseren Übersichtlichkeit wegen schräg gezeichnete Strahl wird an den verschiedenen Grenzflächen so reflektiert, dass die einzelnen Strahlen jeweils in Phase sind und sich somit konstruktiv überlagern. (c) Abfall der Feldintensität beim Eindringen in den Bragg-Spiegel.

exakt die die internen Absorptionsverluste α und die Verluste durch die beiden Endspiegel mit den Reflexionsgraden R_1 und R_2 aus. l ist die Länge des verstärkenden Mediums.

Im Fall von kantenemittierenden Halbleiterlasern wird der Resonator meist durch die senkrecht zur optischen Ausbreitungsrichtungen liegenden Spaltkanten des Halbleitermaterials gebildet. Durch den Brechungsindexsprung vom Halbleitermaterial ($n=2.5-3.5$) zu Luft wird ein Reflexionsgrad von ca. 30% erreicht. Dieser verhältnismäßig geringe Reflexionsgrad ist wegen der großen Resonatorlänge von typischerweise mehreren hundert Mikrometern bis zu einem Millimeter und des damit verbundenen langen optischen Weges im aktiven Material für das Einsetzen von stimulierter Emission ausreichend.

Seit den 1980er Jahren hat sich zusätzlich auch ein anderes Laserdesign etabliert, das des oberflächenemittierenden Vertikalresonators (*engl.: vertical-cavity surface-emitting laser, VCSEL*). Hierbei findet die Strahlführung nicht in der Ebene der aktiven Schicht statt, sondern senkrecht dazu. Da die optisch aktive Schicht in den meisten Fällen aus einem oder mehreren Quantenfilmen oder Quantenpunktschichten besteht, welche vom Licht senkrecht durchlaufen werden, beträgt die Länge des aktiven Materials l in Formel 2.13 nur wenige Nanometer. Damit ist sie wesentlich geringer als beim kantenemittierenden Laser und das Licht wird in einem senkrechten Durchlauf durch diese Schichten nur wenig verstärkt. Um dennoch eine Lasertätigkeit zu erreichen, müssen die Reflexionsgrade R_1 und R_2 der beiden Spiegel des VCSELs im Vergleich mit dem Kantenemitter wesentlich höhere Werte aufweisen.

Planare Mikroresonatoren

Die für VCSEL benötigten sehr hohen Reflexionsgrade von über 99% lassen sich mit herkömmlichen Metallspiegeln nicht mehr erreichen, statt dessen werden hierfür Bragg-Spiegel (*engl.: distributed Bragg reflectors, DBRs*) eingesetzt. Ein Bragg-Spiegel besteht

aus alternierenden Schichten von Halbleitermaterialien mit hohem Brechungsindex n_h und niedrigem Brechungsindex n_l (siehe Abbildung 2.6 (a)). Beim Durchgang einer Lichtwelle durch den Spiegel findet an jeder Grenzfläche eine Teilreflexion der Lichtwelle statt. Beim Übergang von einem optisch dichteren Material mit hohem Brechungsindex zu einem optisch dünneren Material findet zusätzlich noch ein Phasensprung um π statt. Die Vielstrahlinterferenz der reflektierten Teilstrahlen führt bei einer optischen Dicke der Schichten von $d_{h,l}(\lambda) = \lambda_B/4n_{h,l}(\lambda)$ zu konstruktiver Interferenz und somit zu einer maximalen Reflexion für die Bragg-Wellenlänge λ_B . Die Teilreflexion an den alternierenden Schichten ist, zusammen mit der optischen Feldverteilung des Bragg-Spiegels, zur Veranschaulichung in Abbildung 2.6 (b) skizziert.

Ein grundsätzlicher Unterschied zwischen den Bragg-Spiegeln und einem herkömmlichen Metallspiegel ist das Eindringen des elektromagnetischen Feldes in den Spiegel. Die entsprechende Feldverteilung ist in Abbildung 2.6 (c) skizziert. Durch die Vielfachinterferenz fällt die Intensität des elektromagnetischen Feldes exponentiell über viele Spiegelschichten ab, wobei die Eindringtiefe in die Spiegel vom Brechungsindexkontrast abhängt und mit zunehmendem Kontrast abnimmt. Der Punkt, an welchem die Feldintensität auf das $1/e^2$ -fache abgenommen hat, wird auch als Energieeindringtiefe l_{eff} bezeichnet und lässt sich mit dem Indexkontrast $\Delta n = n_h - n_l$ nach [72] zu

$$l_{eff} = \lambda_B / (4\Delta n) \quad (2.14)$$

berechnen.

Wegen der vermehrten Rückstreuung nimmt der maximale Reflexionsgrad R_{max} einerseits mit der Anzahl an Schichtpaaren N mit hohem bzw. niedrigem Brechungsindex zu. Andererseits nimmt die Gesamtreflexion des Bragg-Spiegels durch den verstärkten Reflexionsgrad pro Schichtpaar auch mit dem Indexkontrast zu. Insgesamt lässt sich der maximale Reflexionsgrad für einen senkrechten Einfall unter Vernachlässigung von Absorption zu

$$R_{max} = \left(\frac{1 - (n_l/n_h)^{2N}}{1 + (n_l/n_h)^{2N}} \right)^2 \quad (2.15)$$

berechnen [73]. Dieser maximale Reflexionsgrad wird nur für die spektrale Position der Bragg-Wellenlänge λ_B erreicht. In dieser Betrachtung steigt die Reflexion mit steigender Anzahl an Spiegelpaaren bis zum Maximalwert von $R = 1$ an. Unter Berücksichtigung von Absorptionsprozessen nähert sich die Reflexion jedoch asymptotisch einem Grenzwert kleiner eins an. Da die Reflexion stark von der Wellenlänge abhängt, bildet sich für einen senkrechten Einfall des Lichts um die Zentralwellenlänge λ_B ein Plateau mit hoher Reflexion, das sogenannte Stoppband, aus. Die Breite $\Delta\lambda$ dieses Stoppbandes hängt ebenfalls vom Indexkontrast ab und nimmt mit diesem zu [73]:

$$\Delta\lambda \approx \frac{4}{\pi} \cdot \arcsin \left(\frac{\Delta n}{n_l + n_h} \right) \cdot \lambda_B \quad . \quad (2.16)$$

In Abbildung 2.7 (a) sind mit dem Programm CAMFR (*Cavity Modelling Framework* [74, 75]) simulierte Reflexionsspektren für DBR-Spiegel mit einer unterschiedlichen Anzahl an Spiegelpaaren (gepunktet: 15, gestrichelt: 30 Spiegelpaare) und ansonsten identischen Parametern gezeigt. Mit zunehmender Anzahl an Spiegelpaaren erhöht sich dabei der maximale Reflexionsgrad, während sich die Breite des Stoppbandes nur unwesentlich ändert. Charakteristisch

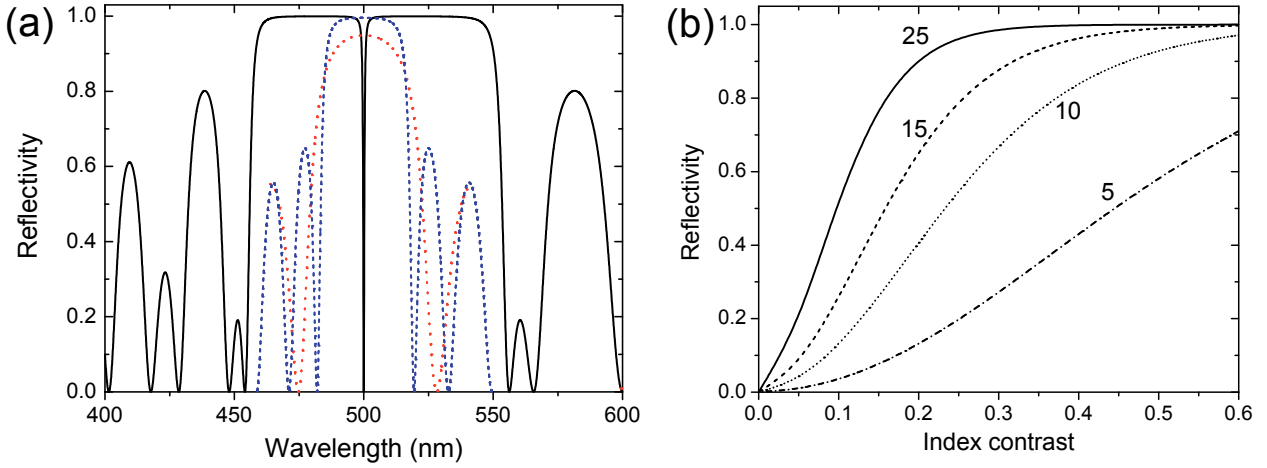


Abbildung 2.7: (a) Mit CAMFR berechnete Reflexion von Bragg-Spiegeln mit 15 (gepunktet) bzw. 30 (gestrichelt) Spiegelpaaren für senkrechten Einfall und $\lambda_B = 500$ nm sowie $n_h = 2.5$ und $n_l = 2.3$. Bei Einbetten einer Kavitätsabstandsschicht ergibt sich das durchgezogene Reflexionsspektrum mit der charakteristischen Kavitätsresonanz bei λ_B (jeweils zehn Spiegelpaare, $n_h = 2.5$, $n_l = 2.15$). Daten teilweise aus [76]. (b) Abhängigkeit der Reflexion vom Indexkontrast ($n_h = 2.75$) für eine verschiedene an den Kurven gekennzeichnete Anzahl an Spiegelpaaren. Berechnung nach Formel 2.15.

für das Reflexionsspektrum eines Bragg-Spiegels ist das oszillatorische Verhalten der Reflexion spektral unter- und oberhalb des Stopbandes. Eine möglichst genaue Kenntnis des Reflexionsspektrums ist insbesondere für eine spektrale Abstimmung der Anregungswellenlänge auf ein Reflexionsminimum und damit für eine effiziente Anregung der aktiven Schicht notwendig. In Abbildung 2.7 (b) ist der nach Formel 2.15 berechnete Reflexionsgrad eines Bragg-Spiegels für eine verschiedene Anzahl an Spiegelpaaren gegenüber dem Indexkontrast aufgetragen. Die Reflexion der Spiegelschichten nimmt sowohl mit zunehmendem Indexkontrast wie auch mit einer zunehmenden Anzahl an Spiegelpaaren zu, wobei ein größerer Indexkontrast den zusätzlichen Vorteil eines breiteren Stopbandes mit sich bringt.

Bringt man zwischen zwei solche DBR-Spiegel eine zusätzliche Schicht, eine sogenannte Kavitätsabstandsschicht, ein, so wird dadurch der periodische Aufbau gestört. Infolgedessen bildet sich innerhalb des Stopbandes ein erlaubter optischer Zustand aus, für welchen die Reflexion fast völlig einbricht. Die optische Dicke der Kavitätsabstandsschicht L_C mit dem Brechungsindex n_C muss dabei ein Vielfaches der halben Bragg-Wellenlänge sein: $L_C = m\lambda_B/2n_C$. Um eine effektive Ankopplung der exzitonischen Rekombinationsprozesse an das elektromagnetische Feld in der Kavität zu erreichen, muss sich die aktive Schicht am Feldmaximum der Kavität befinden. Wird die aktive Schicht mittig in der Kavitätsabstandsschicht platziert, so muss die Dicke für eine Kavität aus Niederindexmaterial ein ungeradzahliges Vielfaches der halben Wellenlänge $\lambda/2$ betragen, im Fall einer Kavität aus Hochindexmaterial entsprechend ein Vielfaches der Wellenlänge λ . Alle in dieser Arbeit untersuchten Strukturen besitzen eine Kavität aus Hochindexmaterial mit einer Länge von λ .

In Abbildung 2.7 (a) ist das berechnete Reflexionsspektrum eines Vertikalresonators mit $n_h = 2.5$ und $n_l = 2.0$ und jeweils zehn unteren und oberen Spiegelpaaren zu sehen (durchgezogene Linie). Spektral mittig im Stopband bei der Wellenlänge $\lambda_B = 500$ nm liegt die Kavitätsresonanz, bei welcher die Reflexion deutlich einbricht.

Ein wichtiges Charakteristikum eines Resonators ist die Güte seines optischen Einschlusses, welche über den Qualitätsfaktor (Q-Faktor) definiert wird. Je größer der Q-Faktor einer Kavität ist, desto länger ist die Verweildauer des Photons in der Kavität. Berechnet wird der Q-Faktor über die spektrale Halbwertsbreite ΔE bzw. $\Delta\lambda$ der resonanten Mode des Resonators gemäß

$$Q = E/\Delta E = \lambda/\Delta\lambda \quad , \quad (2.17)$$

wobei E bzw. λ die Energie und Wellenlänge am Modenmaximum sind. Für die bisher beschriebenen Abhängigkeiten wurde stets ein senkrechter Einfall der Lichtwelle auf die Spiegelschichten angenommen. Bei einem schrägen Einfall der Lichtwelle auf die DBR-Schichten wird der optische Weg innerhalb einer Schicht länger, womit die Bedingung für konstruktive Interferenz für eine größere Wellenlänge erfüllt wird. Zudem sinkt der Überlapp der Wellen, was zu einem deutlichen Abnahme der Reflexion führt.

Dreidimensionaler optischer Einschluss in Säulenresonatoren

In den planaren Mikroresonatoren besteht durch die Bragg-Spiegel ein eindimensionaler optischer Einschluss in der Wachstumsrichtung senkrecht zur aktiven Schicht. Parallel zur aktiven Schicht liegt jedoch kein optischer Einschluss vor. Im idealisierten Fall ohne Absorption können sich Lichtwellen daher parallel zur aktiven Schicht ungehindert ausbreiten. Durch chemische oder physikalische Ätzprozesse lassen sich aus der planaren Struktur Säulenresonatoren herstellen und somit die laterale Ausbreitung der Lichtwelle unterbinden. Dabei führt der Sprung des Brechungsindex beim Übergang vom Halbleitermaterial des Säulenresonators ($n_{sc} \approx 2.5 - 3.5$) zur umgebenden Luft ($n_{air} \approx 1$) zu einer Totalreflexion der Lichtwelle an der Säulenseitenfläche. Zusammen mit dem lateralen optischen Einschluss durch die Bragg-Spiegel ergibt sich damit eine Einschränkung der Ausbreitung der Lichtwelle in allen drei Raumrichtungen. Das Volumen in welchem das optische Feld eingeschlossen ist, wird als Modenvolumen V_m bezeichnet und berechnet sich zu [77]

$$V_m = \frac{\int \epsilon(\vec{r}) \left| \vec{E}(\vec{r}) \right|^2 d^3r}{\epsilon(\vec{r}_{max}) \left| \vec{E}_{max}(\vec{r}_{max}) \right|^2} \quad . \quad (2.18)$$

Das Integral summiert dabei das Betragsquadrat des elektrischen Feldes \vec{E} der Mode am Ort \vec{r} multipliziert mit der jeweiligen Dielektrizitätskonstante $\epsilon(\vec{r})$ über den gesamten Raum auf. Das Modenvolumen entspricht dann dem Integral, welches auf das Maximum der Energiedichte $\epsilon \left| \vec{E}_{max} \right|^2$ an der Stelle \vec{r}_{max} normiert wird. Wegen einer leichteren Vergleichbarkeit zwischen unterschiedlichen Resonatoren wird das Modenvolumen gewöhnlich in Einheiten der Wellenlänge λ im Material mit Brechungsindex n angegeben: $(\lambda/n)^3$.

Aufgrund des dreidimensionalen optischen Einschlusses existieren in den Säulenresonatoren nur diskrete optische Moden [10, 76, 78]. Der dreidimensionale optische Einschluss begründet auch die alternative Bezeichnung der Säulenresonatoren als photonische Punkte. Wegen des für viele Anwendungen bevorzugten symmetrischen Strahlprofils in Säulenrichtung werden die Säulenresonatoren hauptsächlich mit einem kreisförmigen Querschnitt prozessiert. In Abbildung 2.8 ist beispielhaft die berechnete Transmission mit den diskreten optischen Moden für einen Säulenresonator mit einem Durchmesser von $3.5\mu\text{m}$ gezeigt. Die Moden

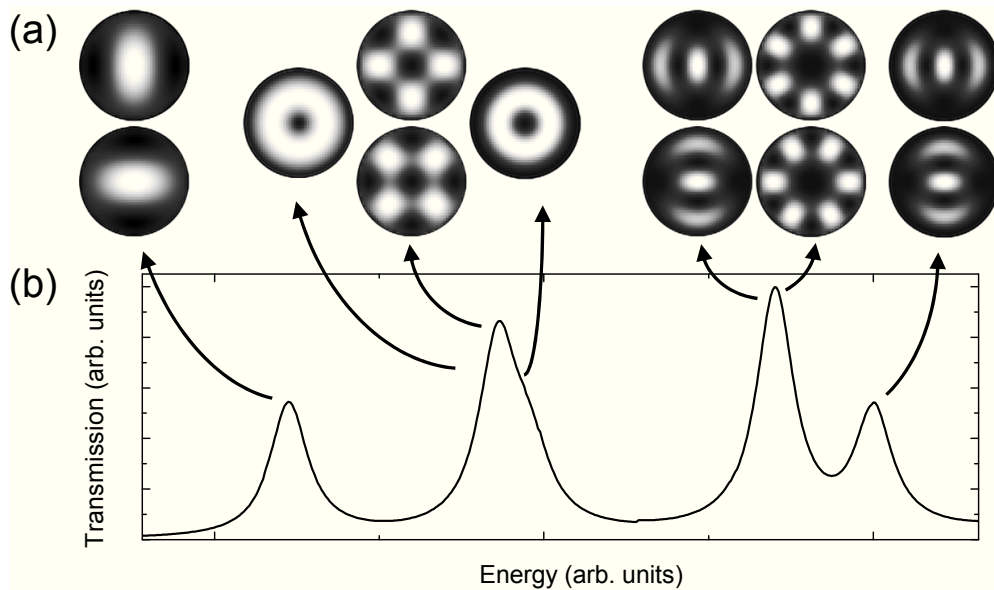


Abbildung 2.8: Oben: Berechnete transversale Intensitätsverteilung ausgewählter Moden in einem Säulenresonator. Hellere Bereiche stehen für eine höhere Feldintensität, übereinander dargestellte Moden sind energetisch entartet. Berechnung: Prof. Dr. Jan Wiersig. Unten: Beispielhaftes Transmissionsspektrum eines Säulenresonators. Entnommen aus [76].

besitzen von links nach rechts eine zunehmende Energie, die Mode mit der geringsten Energie wird als Fundamental- oder Grundmode bezeichnet. Oberhalb des Transmissionsspektrums ist die berechnete transversale Intensitätsverteilung der niederenergetischsten Moden eines Säulenresonators gezeigt. Die Darstellung entspricht einer Blickrichtung senkrecht von oben auf den Säulenresonator. Im Fall eines Säulenresonators mit exakt kreisförmigem Querschnitt sind die jeweils übereinander dargestellten Moden energetisch entartet und besitzen an derselben spektralen Position unterschiedlich polarisierte Komponenten. Durch einen asymmetrischen (z. B. elliptischen) Querschnitt der Säulenresonatoren lässt sich diese Entartung der Moden jedoch aufheben [21].

Neben diesen wohldefinierten Moden existiert noch ein Kontinuum an sogenannten Leckmoden, bei welchen die Lichtwelle unter einem solchen Winkel auf die Seitenwände des Säulenresonators auftrifft, dass die Bedingung der Totalreflexion nicht erfüllt wird. Das Licht tritt seitlich aus der Kavität aus und geht dadurch für die weitere Nutzung verloren.

Zusätzlich zur Bestimmung aus den Reflexionsspektren lässt sich die Güte einer Kavität auch durch Photolumineszenzmessungen an Säulenresonatoren ermitteln. Dazu wird aus der lorentzförmigen Grundmode das Verhältnis aus spektraler Lage der Mode bei λ und der vollen Breite bei halber Maximalintensität $\Delta\lambda$ gebildet, welches nach $Q = \lambda/\Delta\lambda$ dem Qualitätsfaktor entspricht. Diese Methode liefert im Allgemeinen, wegen der geringeren angeregten Fläche eines Säulenresonators im Vergleich zum Anregungspot bei Reflexionsmessungen, exaktere Ergebnisse als eine Bestimmung des Qualitätsfaktors aus Reflexionsmessungen und ist dementsprechend vorzuziehen. Trotz der Notwendigkeit einer vorherigen Strukturierung der Proben und des damit verbundenen größeren Arbeitsaufwandes wurde sie daher für alle in dieser Arbeit charakterisierten Proben angewandt.

Ein Säulenresonator kann auch als ein von zwei Spiegeln umgebener Wellenleiter aufgefasst werden, in welchem diskrete Moden existieren. Das optische Feld dieser Moden besitzt ei-

ne gewisse Intensität außerhalb des Säulenresonators, welche sowohl vom Durchmesser des Säulenresonators wie auch von der Feldverteilung der jeweiligen Mode bestimmt wird. Jedem Säulendurchmesser kann dann ein effektiver Brechungsindex n_{eff}^d zugeordnet werden, welcher zwischen dem Brechungsindex der planaren Kavität n_c und dem der umgebenden Luft ($n_{air} = 1$) liegt [21]. Da sich bei abnehmendem Säulendurchmesser ein größerer Anteil der Intensität der optischen Mode außerhalb des Säulenresonators und damit im Bereich des geringeren Brechungsindex der Luft befindet, nimmt der effektive Brechungsindex mit abnehmendem Säulendurchmesser ebenfalls ab. Für die spektrale Position der Fundamentalmode gilt die Resonanzbedingung $\lambda_{FM}(d) = n_{eff}^d \cdot L_{eff}$. Die effektive Kavitätslänge, welche sich aus der Dicke der Kavitätsabstandsschicht und der Energieeindringtiefe l_{eff} in die beiden Spiegel (siehe Gleichung 2.14) zusammensetzt, ist für eine prozessierte Kavität fest. Da der effektive Brechungsindex n_{eff}^d vom Durchmesser des Säulenresonators abhängt, wirkt sich ein unterschiedlicher Säulendurchmesser direkt auf die spektrale Lage der Moden aus. Dadurch verschiebt sich die spektrale Position der Grundmode mit abnehmendem Säulendurchmesser zu kleineren Wellenlängen oder größeren Energien. Mit E_0 als spektraler Position der Grundmode des planaren, unstrukturierten Resonators ergibt sich die Abhängigkeit der Grundmode eines Säulenresonators von dessen Durchmesser d zu

$$E(d) = \sqrt{E_0 + \frac{c}{d^2}} \quad (2.19)$$

wobei c ein Anpassungsparameter ist [79]. Bei kleiner werdendem Durchmesser vergrößert sich zudem der freie Spektralbereich zwischen den transversalen Moden.

Weiterhin nimmt bei abnehmendem Durchmesser der Säulenresonatoren die Intensität des optischen Feldes an der räumlichen Position der Seitenwände zu. Eine eventuelle Rauigkeit der Seitenwand führt somit zu einer vom Durchmesser abhängigen Ankopplung des photonischen Feldes an Leckmoden und dadurch zu einer verringerten Güte für Resonatoren mit kleinerem Durchmesser. Für hohe Q-Faktoren sind die Verluste aus der internen Absorption und der Streuung an den Seitenflächen näherungsweise additiv, wodurch sich der Q-Faktor zu

$$\frac{1}{Q} = \frac{1}{Q_{intr}} + \frac{1}{Q_{scatter}} \quad (2.20)$$

ermitteln lässt [80]. Der Streuterm $1/Q_{scatter}$ hängt vom Durchmesser des Säulenresonators d und der Intensität der Mode an der Seitenwand ab. Die Intensität der Mode lässt sich wiederum durch die Besselfunktion erster Ordnung $J_0(k_t d)$ ausdrücken, welche nach $k_t = n^2 k_0^2 - \beta_m$ vom Brechungsindex n und der Propagationskonstante β_m abhängt. Letztere beschreibt die Amplitudenänderung des elektromagnetischen Feldes bei dessen Ausbreitung. Für die Abhängigkeit des Q-Faktors vom Durchmesser ergibt sich mit der Proportionalitätskonstante ζ schließlich folgender Zusammenhang [80]:

$$\frac{1}{Q(d)} = \frac{1}{Q_{intr}} + \zeta \frac{J_0^2(k_t d)}{d} \quad (2.21)$$

Der Q-Faktor eines Säulenresonators nimmt daher mit zunehmendem Durchmesser ebenfalls zu und nähert sich für große Durchmesser dem Q-Faktor der planaren Kavität an.

Je nach Resonatorgeometrie muss der Streuterm entsprechend angepasst werden. So hat bei Säulenresonatoren mit elliptischem Querschnitt z. B. die Elliptizität einen entscheidenden Einfluss auf das Streuverhalten und damit auf den Q-Faktor.

Insgesamt führt bei den Mikrosäulenresonatoren der untere Bragg-Spiegel mit seinem sehr hohen Reflexionsgrad für die Zentralwellenlänge λ_B zu einer bevorzugten Abstrahlung der von eingebetteten Quantenfilmen oder -punkten emittierten Photonen in den oberen Halbraum. Die Totalreflexion an den Seitenwänden der Säulenresonatoren verhindert eine ungewollte Abstrahlung in lateraler Richtung. Insgesamt führt dies, insbesondere für die wegen ihres gaußförmigen Strahlprofils technologisch interessante Grundmode, zu einer annähernd senkrecht zur Probenoberfläche gerichteten Abstrahlung. Diese gerichtete Abstrahlung lässt sich verhältnismäßig leicht durch Linsen kollimieren oder in Faseroptiken einkoppeln.

2.4 Licht-Materie-Wechselwirkung in Mikroresonatoren

Neben der in den letzten Abschnitten beschriebenen Erhöhung der Auskuppeffizienz der Photonen aus dem Halbleiter aufgrund einer gerichteten Abstrahlung wird durch den dreidimensionalen optischen Einschluss und die damit verbundene Ausbildung von diskreten Moden auch die Licht-Materie-Wechselwirkung verändert.

Betrachtet man das System aus Exziton (x) und Kavität (cav) als zwei gekoppelte Oszillatoren, so lassen sich für den Resonanzfall ($E_x = E_{cav}$) die Energien der Moden des gekoppelten Systems durch

$$E_{1,2} = E_0 - \frac{i(\gamma_{cav} + \gamma_x)}{4} \pm \sqrt{g^2 - \left(\frac{\gamma_{cav} - \gamma_x}{4}\right)^2} \quad (2.22)$$

berechnen [81, 82]. Hierbei ist γ_x die spektrale Breite (FWHM) der exzitonischen Rekombination und γ_{cav} die spektrale Breite der Resonatormode. Aus dem Kopplungsparameter zwischen der exzitonischen Anregung und dem Photon in der Kavität

$$g = \sqrt{\frac{e^2 f}{4\epsilon_r \epsilon_0 m_0 V_m}} \quad , \quad (2.23)$$

welcher sich aus der Oszillatorstärke f und dem Modenvolumen V_m berechnen lässt [83], leiten sich hieraus zwei grundlegend verschiedene Regime ab:

- Ist $g^2 > \left(\frac{\gamma_{cav} - \gamma_x}{4}\right)^2$, der Kopplungsparameter also größer als die Differenz der Linienbreiten, spricht man vom Bereich der starken Kopplung. Für diesen Bereich ergeben sich aus Gleichung 2.22 für die beiden Energien E_1 und E_2 unterschiedliche Werte, welche durch die Rabi-Energie $\hbar\Omega = E_1 - E_2$ voneinander getrennt sind. In diesem Regime besteht ein fortwährender Energieaustausch zwischen Exziton und Photon, welcher als Emission und Absorption des Photons aufgefasst werden kann. Das System vollführt Rabi-Oszillationen mit der Rabi-Frequenz Ω .
- Ist $g^2 < \left(\frac{\gamma_{cav} - \gamma_x}{4}\right)^2$, der Kopplungsparameter also kleiner als die Differenz der Linienbreiten, spricht man vom Bereich der schwachen Kopplung. In diesem Bereich gilt für die Realteile der beiden Energien $E_1 = E_2 = E_0$, womit sie entartet sind. Anschaulich zeichnet sich die schwache Kopplung dadurch aus, dass die Emission eines Photons ein irreversibler Prozess ist, die Reabsorption eines emittierten Photons also sehr unwahrscheinlich ist.

2.4.1 Schwache Kopplung

Da der Großteil dieser Arbeit im Bereich der schwachen Kopplung angesiedelt ist, wurde dieser für die Berechnung der Reflexionsspektren der Mikroresonatoren im letzten Abschnitt vorausgesetzt. Auf die hiervon abweichenden Reflexionsspektren im Fall der starken Kopplung wird in Abschnitt 2.4.2 gesondert eingegangen.

Purcell-Effekt

Die mittlere Lebensdauer τ eines angeregten Zustands $|i\rangle$ der Energie E_i , welcher unter Emission eines Photons in den Zustand $|f\rangle$ der Energie E_f übergeht, lässt sich durch *Fermis Goldene Regel* berechnen [84]. Im Fall von diskreten optischen Zuständen lässt sich die Zustandsdichte der Moden im Endzustand als Summe von Deltafunktionen über alle Endzustände darstellen. Mit ω als Frequenz des emittierten Photons beschreibt sie durch

$$1/\tau = \frac{2\pi}{\hbar} \sum_f \left| \langle f | \vec{d} \cdot \vec{E}(\vec{r}) | i \rangle \right|^2 \delta(E_i - E_f + \hbar\omega) \quad (2.24)$$

eine Abhängigkeit der Lebensdauer des Ausgangszustands von der Dichte der optischen Moden im Endzustand. Dabei sind $\vec{E}(\vec{r})$ das elektrische Feld am Ort des Emitters und \vec{d} das Dipolmoment. Die optische Zustandsdichte berücksichtigt dabei die Tatsache, dass eine Abstrahlung nur in existierende Moden erfolgen kann. Wird die optische Zustandsdichte gegenüber der Zustandsdichte des elektromagnetischen Vakuums verändert, z. B. durch die diskreten Moden in einem Mikroresonator, wirkt sich dies unmittelbar auf die Lebensdauern der Zustände aus. Auf diese Weise kann durch eine Mikrokavität die spontane Emission im Resonanzfall mit einer Mode verstärkt [77], bei Abwesenheit von passenden Endzuständen jedoch auch verringert [85] werden. Diese Veränderung der Übergangswahrscheinlichkeiten und damit der Lebensdauern von angeregten elektronischen Zuständen ist als *Purcell-Effekt* bekannt [86]. Einen Zusammenhang zwischen der Lebensdauer eines angeregten Zustandes ohne Kavität τ_0 und der Lebensdauer τ_{cav} im Mikroresonator ist für den Fall einer m -fach entarteten Resonatormode durch den Ausdruck

$$\frac{1}{\tau_{cav}} = m \cdot \underbrace{\frac{1}{1 + 4Q^2 (\lambda_{em}/\lambda_{cav} - 1)^2}}_{\text{spektrale Verstimmung}} \cdot \underbrace{\frac{|\vec{E}(\vec{r}_{em})|^2}{|\vec{E}(\vec{r}_{max})|^2} \cdot \cos^2 \Theta \cdot F_P}_{\text{räumliche Verstimmung}} \cdot \frac{1}{\tau_0} + \frac{1}{\tau_{scat}} \quad (2.25)$$

gegeben [87, 88]. Der erste Term beschreibt dabei eine mögliche spektrale Verstimmung zwischen Emissionsmaximum des Emitters λ_{em} und der Lage der Resonatormode λ_{cav} . Eine eventuelle räumliche Abweichung der Feldmaxima der Resonatormode $\vec{E}(\vec{r}_{max})$ und des Emitters $\vec{E}(\vec{r}_{em})$ wird durch den zweiten Term berücksichtigt. Durch den Ausdruck $\frac{1}{\tau_{scat}}$ wird noch den Abstrahlverlusten in Leckmoden Rechnung getragen. Der sogenannte Purcell-Faktor F_P ist allein durch das Modenvolumen und die Güte der Kavität bestimmt und lässt sich bei Kenntnis des Modenvolumens V_m , des Qualitätsfaktors Q sowie des Brechungsindex n der Kavität durch

$$F_P = \frac{3}{4\pi^2} \left(\frac{\lambda_{cav}}{n} \right)^3 \frac{Q}{V_m} \quad (2.26)$$

berechnen. Unter perfekter spektraler Übereinstimmung von Emissionswellenlänge und Maximum der Kavitätsmode, einer räumlichen Lage des Emitters im Maximum des optischen Feldes der Kavität sowie bei vernachlässigbaren Abstrahlverlusten in Leckmoden lässt sich Formel 2.25 für eine nicht-entartete Mode wesentlich vereinfachen und als

$$\tau_{cav} = \frac{\tau_0}{F_P} \quad (2.27)$$

darstellen. Dem experimentell oftmals vorliegenden Einfluss mehrerer Emitter mit einer spektralen Breite des Emittersensembles von $\Delta\omega_e$ zentriert um die Position ω_e wird durch die Einführung eines effektiven Q-Faktors Rechnung getragen [88]:

$$Q \longrightarrow Q_{eff} = \left[\frac{1}{Q} + \frac{\Delta\omega_e}{\omega_e} \right]^{-1} . \quad (2.28)$$

In einer systematischen Studie an GaAs-Säulenresonatoren mit unterschiedlichen Durchmessern konnten *Gérard et al.* den Einfluss aller Effekte wie der spektralen und räumlichen Verstimmung zwischen Quantenpunkt und Kavitätsmode sowie die Auswirkung mehrerer Emitter mit der empirischen Beziehung

$$F_P^{eff} = \frac{F_P}{6} + 1. \quad (2.29)$$

durch einen effektiven Purcell-Faktor ausdrücken [77].

Die spektrale Lage der Quantenpunktemission kann durch eine Veränderung der Proben-temperatur in einem gewissen Rahmen auf die Kavitätsmode abgestimmt werden. Dabei wird ausgenutzt, dass der Brechungsindex, welcher die spektrale Lage der Kavitätsresonanz bestimmt, weniger stark von der Temperatur abhängt als die Bandlücke des Quantenpunktmaterials, welche die spektrale Lage der Quantenpunktemission bestimmt. Weitere Möglichkeiten zur spektralen und räumlichen Abstimmung von Quantenpunktemission und Resonatormode werden in Abschnitt 3.2.2 aufgezeigt.

Für einen großen Purcell-Faktor, welcher zu einer kurzen Lebensdauer der optischen Zustände und damit zu einer effizienten Lichterzeugung führt, ist zudem das Verhältnis von Q/V entscheidend. Es muss folglich eine möglichst hohe Güte bei gleichzeitig kleinem Modenvolumen erreicht werden. Da die höchste Güte bei großem Durchmesser, das geringste Modenvolumen jedoch bei kleinem Durchmesser vorliegen, muss für den maximalen Purcell-Faktor der optimale Kompromiss für den Säulendurchmesser gefunden werden. Für ZnSe-basierte Säulenresonatoren wurde für kleine Durchmesser eine Überkompensation der Verringerung der Güte der Resonatoren durch das abnehmende Modenvolumen festgestellt, so dass die höchsten Purcell-Faktoren für einen Säulendurchmesser von $0.7\,\mu\text{m}$ erhalten wurden [76].

Stimulierte Emission in Säulenresonatoren

Gegenüber herkömmlichen kantenemittierenden Lasern besitzen VCSEL einige entscheidende Vorteile. Vergleicht man den longitudinalen Modenabstand

$$\Delta\lambda \approx \frac{\lambda^2}{2n_{eff}L} \quad (2.30)$$

eines Kantenemitters mit dem eines VCSELs, erhält man unter Verwendung typischer Werte für das II-VI-Materialsystem ($\lambda = 440 \text{ nm}$, $n_{eff} = 2.7$) und einer Kavitätslänge von $L = 1 \text{ mm}$ für den Kantenemitter einen Modenabstand von etwa $\Delta\lambda = 0.04 \text{ nm}$. Bei einer typischen spektralen Breite des aktiven Materials von mehreren Nanometern liegen damit viele Moden innerhalb des Verstärkungsbereichs und stehen bezüglich des Einsetzens von stimulierter Emission in Konkurrenz zueinander. Durch die Reduzierung der Kavitätslänge im VCSEL auf etwa $1 \text{ }\mu\text{m}$ bei ansonsten unveränderten Parametern vergrößert sich der Modenabstand auf rund $\Delta\lambda = 4 \text{ nm}$. Entsprechend wird nur eine Mode verstärkt und es bildet sich longitudinal ein Einzelmodenbetrieb aus, welcher für eine niedrige Laserschwelle vorteilhaft ist. In transversaler Richtung können jedoch entsprechend Abbildung 2.8 mehrere Moden vorliegen.

Der Anteil der emittierten Photonen, welcher in die lasende Mode eingekoppelt wird, wird auch als β -Faktor bezeichnet. Bei kantenemittierenden Lasern liegt dieser Faktor typischerweise bei etwa $\beta \approx 10^{-4} - 10^{-5}$ [89], bei planaren Mikrokavitäten ohne lateralen Einschluss bereits bei etwa 0.01 und bei VCSELn werden Werte von über 0.1 erreicht. Einen Zusammenhang zwischen β - und Purcell-Faktor liefert die Beziehung von *Gérard et al.* [90]:

$$\beta = \frac{F_P}{F_P + 1} \quad . \quad (2.31)$$

Für hohe Purcell-Faktoren wird folglich ein Großteil der emittierten Photonen in die lasende Mode eingekoppelt. Der Grenzfall von $\beta \rightarrow 1$ stellt den Idealfall eines schwellenlosen Lasers dar.

Zur Verringerung der Laserschwelle trägt auch ein Einschluss des elektromagnetischen Feldes auf kleinerem Raum bei, wie es durch einen hohen Indexkontrast innerhalb der Schichten der Bragg-Spiegel erreicht werden kann. Dadurch befindet sich insgesamt ein größerer Teil des Feldes im Überlapp mit dem aktiven Material, wodurch die stimulierte Emission von Photonen gegenüber der spontanen Emission begünstigt wird.

Insgesamt lässt sich durch die Verwendung von Vertikalresonatoren und insbesondere durch die Strukturierung von Säulenresonatoren die Licht-Materie-Wechselwirkung gezielt beeinflussen und zur Verringerung der Laserschwelle ausnutzen.

Temperaturabhängigkeit der stimulierten Emission

Mit zunehmender Temperatur werden Ladungsträger durch Stöße mit Phononen vermehrt aus dem energetisch niedrigsten Zustand eines Quantenpunktes oder -films in höhere Zustände oder in das umgebende Barrierenmaterial angeregt. Dadurch nimmt bei gleicher Anregungsleistung die Ladungsträgerdichte im niedrigsten Zustand ab. Dieser unterste Zustand ist jedoch meist der Ausgangszustand für die Rekombination bei der stimulierten Emission. Um eine Besetzungsinversion zu erreichen, müssen folglich mit steigender Temperatur vermehrt Ladungsträger angeregt werden, es muss also die Anregungsdichte erhöht werden. Diese Abhängigkeit der Laserschwelle von der Temperatur lässt sich für kantenemittierende Laser durch

$$P_{thr}(T) = P_{thr}(T_1) \cdot \frac{T - T_1}{T_0} \quad (2.32)$$

beschreiben [91]. T_0 ist ein materialspezifischer, phänomenologischer Parameter, der durch die Anpassung an Messwerte bestimmt werden kann und ein Maß für die Temperatursensibilität der Laserschwelle ist. $P_{thr}(T_1)$ ist ein experimentell für die Temperatur T_1 bestimmter

Schwellwert. Im Fall von VCSELn spielt zusätzlich noch der temperaturabhängige Überlapp zwischen Verstärkungsmedium und Kavitätsresonanz eine Rolle, in guter Näherung kann aber auch für VCSEL Formel 2.32 angewendet werden.

Die Temperaturabhängigkeit der Laserschwelle ist bei Quantenfilmen wegen einer leichteren Anregung der Ladungsträger in höherenergetischere Zustände im Vergleich zu Quantenpunkten stärker. Im Fall eines idealen Quantenpunktes mit unendlich hohen Barrieren kann keine thermische Anregung der Ladungsträger in umgebendes Material stattfinden, die Laserschwelle wäre daher temperaturunabhängig. Reale Quantenpunkte stehen jedoch in Wechselwirkung mit dem umgebenden Material (siehe Abschnitt 2.2.3), wodurch sich auch für Quantenpunktproben eine Temperaturabhängigkeit der Laserschwelle ergibt.

2.4.2 Starke Kopplung

Ist der Qualitätsfaktor einer Kavität sehr hoch, kann ein emittiertes Photon lange genug in der Kavität verweilen, um wieder absorbiert zu werden. Der im vorherigen Abschnitt beschriebene Prozess der irreversiblen Emission gilt folglich nicht mehr, die Emission wird reversibel. Dieser Bereich wird als *starke Kopplung* bezeichnet. Durch die ständige Emission und Absorption des Photons besteht ein fortwährender Energieaustausch zwischen Photon und Exziton, bis das Photon schließlich die Kavität verlässt. Diese Rabi-Oszillationen, welche auf einer kürzeren Zeitskala als die Lebensdauer des Photons in der Kavität erfolgen müssen, führen zur Definition eines neuen Quasiteilchens, des Kavitätspolaritons [47].

Betrachtet man das Modell der gekoppelten Oszillatoren (Gleichung 2.22) im Fall des hier vorliegenden großen Kopplungsparameters, für welchen $g^2 > \left(\frac{\gamma_{cav} - \gamma_x}{4}\right)^2$ gilt, so wird die Energieentartung der beiden Niveaus $E_{1,2}$ aufgehoben. Folglich spalten die Energieniveaus in zwei Zustände auf, den energetisch niedriger liegenden des unteren Polaritons (*engl.: lower polariton*, LP) sowie den energetisch höher liegenden des oberen Polaritons (*engl.: upper Polariton*, UP). Die Energieaufspaltung zwischen den beiden Zuständen lässt sich aus Gleichung 2.22 zu

$$\Delta E = 2 \cdot \sqrt{g^2 - \left(\frac{\gamma_{cav} - \gamma_x}{4}\right)^2} \quad (2.33)$$

bestimmen und nimmt bei endlicher spektraler Breite von Emmitter und Resonatormode ab [92]. Im Fall der in dieser Arbeit verwendeten Halbleitermikroresonatoren und tiefen Temperaturen spielt die Dekohärenz des Exzitons eine untergeordnete Rolle, womit $\gamma_{cav} \gg \gamma_x$ gilt. Hierdurch vereinfacht sich die Bedingung für starke Kopplung nach Gleichung 2.33 zu $g > \gamma_{cav}/4$.

Um das Regime der starken Kopplung zu erreichen, muss einerseits der in Gleichung 2.23 definierte Kopplungsparameter g möglichst groß werden und andererseits die spektrale Breite der Kavitätsmode γ_{cav} einen möglichst kleinen Wert besitzen. Da die Breite der Kavitätsmode über $Q = E_{cav}/\gamma_{cav}$ direkt mit dem Qualitätsfaktor in Beziehung steht, entspricht dies einer hohen Güte der Kavität. Insgesamt muss damit zum Erreichen der starken Kopplung eine Optimierung des Ausdrucks $Q\sqrt{f/V_m}$ erfolgen [82].

Wie bereits zu Beginn des Abschnitts 2.4.1 erwähnt, wurden die bisherigen Reflexionsspektren für den Fall der schwachen Kopplung erstellt. In Abbildung 2.9 (a) ist ein mit CAMFR [74, 75] berechnetes Reflexionsspektrum für den Fall der starken Kopplung gezeigt. Für die Rechnung wurde eine Struktur mit zwei Zehnfach-DBRs gewählt, in welche drei Quantenfilme

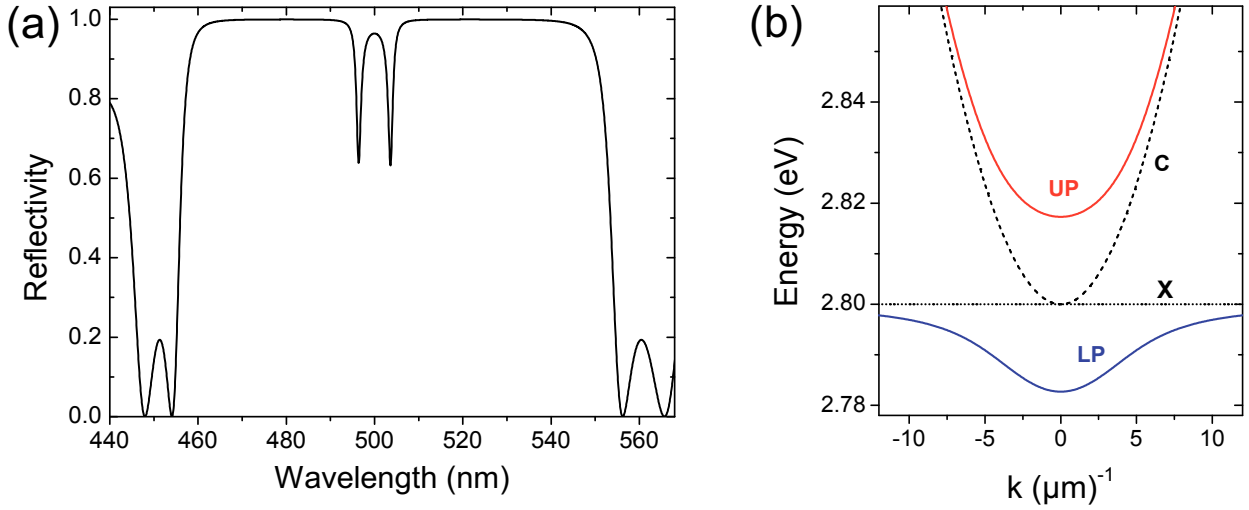


Abbildung 2.9: (a) Mit CAMFR berechnetes Reflexionsspektrum einer DBR-Struktur im Bereich der starken Kopplung für drei Quantenfilme. Aus [76]. (b) Dispersionsrelationen für Exziton (X, gepunktet), Kavitätsphoton (C, gestrichelt) sowie unteres und oberes Polariton (LP bzw. UP, durchgezogen).

mit einer Oszillatorstärke von jeweils $f = 2 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-1}$ eingebettet wurden (Details siehe [76]). Bei den spektralen Positionen von 503.6 nm und 496 nm sind zwei Einbrüche in der Reflexion erkennbar, welche sich dem unteren und oberen Polariton zuordnen lassen. Aus der spektralen Lage dieser Reflexionsminima ergibt sich eine Rabi-Aufspaltung von 7.6 nm bzw. 37.7 meV. Mit zwei Einbrüchen in der Reflexion weicht das Reflexionsspektrum im Fall der starken Kopplung damit deutlich vom Reflexionsspektrum der schwachen Kopplung mit nur einem Reflexionsminimum im Stopband ab (siehe Abbildung 2.7). In Abbildung 2.9 (b) sind die berechneten Dispersionsrelationen von Exziton (X), Kavitätsphoton (C) und des unteren (LP) bzw. oberen (UP) Polaritons für eine Mikrokavität mit drei ZnSe-Quantenfilmen aufgetragen. Dabei wurde exemplarisch eine Rabi-Aufspaltung von 10 meV pro Quantenfilm sowie eine spektrale Resonanz von Exzitonenemission und Kavitätsmode angenommen. Bei $k=0$ ergibt sich aus der Energiedifferenz von oberem und unterem Polariton die Rabi-Aufspaltung Ω . Mit zunehmendem Wert des Betrages des Wellenvektors k nähert sich die Dispersionsrelation des unteren Polaritons der des Exzitons an, entsprechendes gilt für die Dispersionsrelation des oberen Polaritons, welches sich asymptotisch dem Kavitätsphoton annähert. Der charakteristische Verlauf der Dispersionrelationen der Polaritonen hängt entscheidend von der spektralen Verstimung zwischen Exzitonenemission und Kavitätsmode ab. Diese Abhängigkeit lässt sich ausnutzen, um aus der Dispersionsrelation einen Rückschluss auf die vorliegende Verstimung zu erhalten.

Der Bereich der starken Kopplung ermöglicht den Zugang zu neuartigen physikalischen Phänomenen wie einer Bose-Einstein-Kondensation in Mikrokavitäten [93] oder polaritonischem Lasing [94]. Da letzteres nicht auf einer Besetzungsinversion im herkömmlichen Sinne beruht, werden wesentlich geringere Laserschwelle im Vergleich zum photonischen Lasing erwartet [19].

3 Stand der Forschung

Dieses Kapitel gibt einen Überblick über den aktuellen Stand der Forschung, in dessen Rahmen diese Arbeit entstanden ist. Nach einem kurzen Einblick in die Forschungsergebnisse zu den breitlückigen Halbleitern Zinkselenid und Galliumnitrid wird auf wichtige Untersuchungen zum elektronischen Einschluss in Quantenpunkten sowie zum optischen Einschluss in Mikrokavitäten eingegangen.

3.1 Breitlückige Halbleiter

Die ersten spektroskopischen Untersuchungen an Seleniden stammen aus der Mitte der 60er Jahre. Zu diesem Zeitpunkt konnte auch bereits die erste, durch einen Elektronenstrahl angeregte Lasertätigkeit an breitlückigen II-VI-Verbindungen erzielt werden [95]. Exakte und dotierte Schichten konnte jedoch erst durch die Weiterentwicklung der Molekularstrahlepitaxie (*engl.: molecular beam epitaxy*, MBE) und der metallorganischen Gasphasenepitaxie (*engl.: metal-organic vapor-phase epitaxy*, MOVPE) hergestellt werden. Bereits kurz nach der Realisierung n- [96, 97] und p-dotierter [98, 99] Selenidverbindungen durch diese Verfahren Mitte bzw. Ende der 80er Jahre konnte 1990 die erste Leuchtdiode [100] (*engl.: light emitting diode*, LED) hergestellt werden. Die erfolgreiche Demonstration einer Quantenfilm-Laserdiode [101] auf ZnSe-Basis erfolgte nur wenig später.

Die Verwendung von Quantenfilmen als aktivem Material geht dabei auf eine Idee von *Dingle* und *Henry* zurück. Diese sagten aufgrund der veränderten Zustandsdichte für einen Quantenfilmlaser eine geringere Laserschwelle und eine bessere Temperaturbeständigkeit der spektralen Lage der Emission als für die bis dahin üblichen Doppelheterostrukturlaser voraus [102]. Nach der ersten Realisierung eines Quantenfilmlasers durch eine Gruppe um *Holonyak* [103] konnte die geringere Laserschwelle auch experimentell nachgewiesen werden [104].

Da das Problem der Degradation bei ZnSe-basierten Laserdioden unter elektrischem Betrieb (gepulst maximale Lebensdauer von 2700 h [105]) nicht gelöst werden konnte, verringerte sich das Forschungsinteresse hinsichtlich einer kommerziell einsatzfähigen II-VI-basierten Laserdiode ab Ende der 90er Jahre wieder. Gleichzeitig verstärkten sich die Bemühungen zur Realisierung einer effizienten Einzelphotonenquellen für Experimente in der Quanteninformationsverarbeitung, wie z. B. der abhörsicheren Datenübertragung [61, 62, 106, 107]. Hierfür eignen sich insbesondere CdSe-Quantenpunkte, welche aufgrund ihrer hohen Exziton-bindungsenergie noch bei Raumtemperatur eine Photolumineszenz aus der exzitonischen Rekombination zeigen [108, 109]. Daher verschob sich der Forschungsschwerpunkt immer mehr von einer Anwendung als Lasermaterial hin zur Erzeugung einzelner Photonen. Die hohe Oszillatorstärke in Selenidverbindungen [110] lässt diese zudem hinsichtlich des Erreichens von Bose-Einstein-Kondensaten oder polaritonischem Lasing bei Raumtemperatur interessant erscheinen.

Die Forschung auf dem Gebiet der Nitrid-basierten Halbleiter für optische Anwendungen ähnelte anfangs dem der Selenide. So wurde auch bei den Nitriden in den 60er Jahren die ersten Photolumineszenzuntersuchungen durchgeführt [111]. Das Interesse stieg ebenfalls Mitte der 90er Jahre sprunghaft, als es *Nakamura et al.* gelang, zuerst eine GaN-basierte blaue Leuchtdiode [112] und kurz darauf eine blaue Laserdioden zu realisieren [113]. Im Gegensatz zu den Selenid-basierten Bauelementen ist die Lebensdauer von GaN-basierten Leucht- und Laserdioden bei elektrischem Betrieb wesentlich länger, so dass diese zur Marktreife gelangten und inzwischen kommerzielle Verwendung finden.

3.1.1 Quantenpunkte

Das ursprüngliche Interesse an Halbleiter-Quantenpunkten begründete sich hauptsächlich auf der Idee, durch den Einsatz von nulldimensionalen Systemen die Eigenschaften von Halbleiterlasern zu verbessern. So ermittelten *Arakawa* und *Sakaki* 1982 für perfekte nulldimensionale Systeme theoretisch eine temperaturunabhängige Laserschwelle [45]. In einer ersten experimentellen Untersuchung erzeugten sie durch starke Magnetfelder in einem herkömmlichen GaAs-GaAlAs-Doppelheterostrukturlaser einen dreidimensionalen Einschluss der Ladungsträger. Durch diese Erhöhung des Einschlusses der Exzitonen konnte eine Reduzierung der Temperaturabhängigkeit der Laserschwelle im Vergleich zu den Quantenfilmen experimentell nachgewiesen werden [114].

In einer weiterführenden theoretischen Studie berechneten *Asada et al.* die Verstärkung für Halbleiterlaser mit einer aktiven Schicht aus verschieden-dimensionalen Systemen [115]. Dabei wurde für den Fall eines dreidimensionalen Einschlusses im Quantenpunkt eine deutlich reduzierte Laserschwelle ermittelt.

Die ersten selbstorganisiert gewachsenen Quantenpunkte konnten 1985 von *Goldstein et al.* realisiert werden [116]. Hierauf aufbauend gelang *Kirstaedter et al.* 1994 die erste experimentelle Herstellung eines Halbleiterlasers mit Quantenpunkten als aktivem Material sowie dessen Betrieb bei Raumtemperatur [117]. Dabei wurden erstmals die Vorteile eines Quantenpunktlasers gegenüber einem Quantenfilmlaser wie z. B. der geringe Schwellstrom (120 A/cm^2 bei $T = 77 \text{ K}$) experimentell nachgewiesen. Diese Schwellstromdichte konnte im Folgenden sowohl für tiefe Temperaturen (11.5 A/cm^2 für $T = 79 \text{ K}$ [118]) wie auch für einen Betrieb bei Raumtemperatur (26 A/cm^2 [119]) weiter verbessert werden. Letztgenannter Wert war die bis dahin niedrigste für einen Halbleiterdiodenlaser erzielte Schwellstromdichte.

Heutzutage sind auf dem III-V-Materialsystem basierende Quantenpunktlaser vielfach demonstriert worden und industriell einsetzbar [120]. Jedoch wurde festgestellt, dass die ursprünglich erwartete Überlegenheit der Quantenpunktlaser gegenüber Quantenfilmlasern auf einigen Annahmen beruhte, die sich nicht erfüllten. So besitzen reale Quantenpunkte in der Regel mehrere Energieniveaus, die thermisch besetzt werden können. Zudem führt die Fluktuation in der Größe und chemischen Zusammensetzung von selbstorganisiert hergestellten Quantenpunkten zu einer inhomogenen Verbreiterung der Emissionsenergien im Quantenpunktensemble von typischerweise über 50 meV [121], welche die Leistungsfähigkeit der Quantenpunktlaser eingeschränkt [122].

Nach dem ursprünglich auf einer Verbesserung der Diodenlaser gegründeten Interesse an epitaktisch hergestellten Halbleiterquantenpunkten änderte sich der Forschungsschwerpunkt zunehmend hin zur Verwendung von Quantenpunkten zur Erzeugung einzelner Photonen. Diese Einzelphotonenquellen, welche im Idealfall auf Wunsch exakt ein Photon liefern, sind

eine Grundlage sowohl für die Quantenkryptographie, also die abhörsichere Datenübertragung [123], wie auch für Quanteninformationsverarbeitung [124].

Das epitaktische Wachstum ist auf dem III-V-Materialsystem am besten beherrscht, so dass mit diesem Materialsystem die Proben mit der höchsten optischen Qualität hergestellt werden können. Entsprechend werden viele Untersuchungen zuerst auf diesem Materialsystem mit einer Emission im nahen infraroten Spektralbereich durchgeführt. Eine Emission im blaugrünen Spektralbereich ist jedoch für die Anwendung in Projektorsystemen und unter dem Gesichtspunkt der kostengünstig verfügbaren Plastikfasern mit einem Absorptionsminimum um 560 nm sehr interessant [15]. Zudem weisen moderne Detektoren im grünen Spektralbereich ihre höchste Empfindlichkeit auf. Für diese Einsatzgebiete kommen die ab Mitte der 90er Jahre epitaktisch prozessierten Halbleiterquantenpunkte auf Basis von ZnCdSe-Verbindungen sowie die kurz darauf hergestellten Strukturen auf Basis der Gruppe-III-Nitride in Frage. Diese Systeme besitzen weiterhin den Vorteil einer gegenüber dem InAs/GaAs-System stärkeren Einschlussenergie in den Quantenpunkten, welche auf eine größere Effizienz der Emission aus den Quantenpunkten bei einem Betrieb bei Raumtemperatur hoffen lässt. Im Folgenden wird daher hauptsächlich auf Quantenpunkte eingegangen, welche auf diesen beiden breitlückigen Materialsystemen basieren.

Wachstum

Die ersten epitaktisch hergestellten Quantenpunkte wurden Mitte der 90er Jahre kurz nacheinander von mehreren Gruppen im Materialsystem InAs/GaAs realisiert [125, 126]. Zur Vergrößerung des optisch aktiven Materials wurden recht bald Methoden entwickelt, Mehrfachquantenpunktschichten herzustellen [127]. Dabei wurde festgestellt, dass sich die lokal unterschiedlichen Verspannungen im Bereich eines Quantenpunktes in Wachstumsrichtung fortsetzen. Auf diese Weise bilden sich die Quantenpunkte in den nachfolgenden Quantenpunktschichten bevorzugt direkt über den Quantenpunkten der ersten Schicht [128]. Bereits wenige Jahre nachdem die ersten InAs/GaAs Quantenpunkte realisiert worden waren, konnte auch für das II-VI-Materialsystem von ersten Erfolgen bei der Herstellung von Quantenpunkten berichtet werden. So wurden 1996 von *Xin et al.* Quantenpunkte aus CdSe mit Durchmessern im Bereich von 40 ± 5 nm und einer Höhe von etwa 10 nm in Wachstumsrichtung hergestellt [129]. Unmittelbar nach diesem ersten Bericht über epitaktisch hergestellte CdSe-Quantenpunkte wurde weltweit von vielen weiteren Gruppen Ergebnisse zum Wachstum von II-VI Quantenpunkten präsentiert und Mechanismen zur Bildung und Stabilisierung der Quantenpunkte entwickelt [130–134]. In diesen Arbeiten wurden die Quantenpunkte als cadmiumreiche linsenförmige Inseln beschrieben, welche in einer cadmiumarmen ZnCdSe-Matrix eingebettet sind. Die Durchmesser der Quantenpunkte liegen im Bereich von etwa 10 nm mit einer Höhe von 1-2 nm, die Quantenpunktdichte bewegt sich zwischen 10^{10} cm^{-2} und 10^{11} cm^{-2} .

Der in den bisher zitierten Arbeiten meist verwendete Wachstumsmechanismus zur Herstellung der Quantenpunkte wird als Stranski-Krastanov-Modus bezeichnet [135]. Bei diesem Wachstumsmodus bilden sich zuerst verspannte Monolagen aus, die Benetzungsschicht, bevor ab einer gewissen Schichtdicke die Bildung von dreidimensionalen Inseln, den Quantenpunkten, energetisch günstiger wird. Die Quantenpunktbildung erfolgt dabei ohne Bildung von Versetzungen, wie zuerst für Germanium auf Silizium [136] und von InGaAs auf GaAs [137] nachgewiesen werden konnte. Dieser Punkt ist insbesondere für die Nitride sehr interessant, welche generell eine sehr hohe Versetzungsdichte besitzen. Da die elektronischen Zustände

der Benetzungsschicht näher an den Quantenpunktzuständen liegen als die Zustände des Volumenmaterials der umgebenden Schichten, hat die Benetzungsschicht einen wesentlichen Einfluss auf die Eigenschaften der Struktur, die Quantenpunkte können nicht mehr als isoliert von der Umgebung betrachtet werden.

Eine Weiterentwicklung des Stranski-Krastanov-Wachstums mit der MBE stellt die migration-enhanced epitaxy (MEE) dar, welche 1985 von *Horikoshi et al.* entwickelt wurde. Diese Wachstumsmethode basiert auf einem abwechselnden Anbieten beider Komponenten einer binären Verbindung, welche sich in kurzen Wachstumsunterbrechungen selbstständig anordnen [138]. Den Vorteil der MEE gegenüber der herkömmlichen MBE für das Wachstum der Quantenpunkte wird in der Arbeit von *Passow et al.* deutlich, welcher die beiden Verfahren miteinander vergleicht [134]. Beim Wachstum der ZnSe-Bedeckungsschicht der Quantenpunkte mit dem konventionellen MBE-Verfahren ergaben sich Quantenfilme mit Fluktuationen des elektronischen Einschlusses, erst bei Verwendung der MEE entstanden Quantenpunkte ohne Bildung von Stapelfehlern.

Zur Herstellung der InGaN-Quantenpunkte wurde ein neuartiges zweistufiges Verfahren verwendet, welches von *Yamaguchi et al.* in Bremen entwickelt wurde. Dabei erlaubt die Verwendung einer Kombination aus Nukleations- und Formationsschicht die Herstellung von InGaN-Quantenpunktschichten mit Dichten im Bereich von $5 \cdot 10^8$ - $1 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ [139]. Die Details zu diesem Wachstumsverfahren sind in Abschnitt 4.1.2 beschrieben. Ein aktueller Überblick über das Wachstum von InGaN-Quantenpunkten wird in [140] gegeben.

Eigenschaften

Für Untersuchungen sowohl am Quantenpunktensemble wie auch an einzelnen Quantenpunkten hat sich die orts aufgelöste Photolumineszenzspektroskopie als ein wichtiges Hilfsmittel erwiesen [141]. Mit dieser Methode konnten *Kümmel et al.* 1998 erstmals die optischen Eigenschaften einzelner CdSe-Quantenpunkte untersuchen [142].

Durch die diskreten Energieniveaus führen Rekombinationsprozesse im Quantenpunkt zu spektral sehr scharfen Emissionslinien. So konnten *Bacher et al.* für einen CdSe-Quantenpunkt eine spektrale Linienbreite von lediglich $70 \text{ } \mu\text{eV}$ ermitteln [55], während sie bei den Nitridverbindungen mit $170 \text{ } \mu\text{eV}$ geringfügig breiter ist [143]. Sobald die Anregung nicht-resonant erfolgt, werden jedoch Effekte der spektralen Diffusion deutlich (siehe Abschnitt 2.2.2). In Verbindung mit den zeitintegrierten Messungen, welche aufgrund der schwachen Signale bei der Untersuchung einzelner Quantenpunkte unumgänglich sind, führt dies zur Mittlung über viele Emissionsereignisse und damit zu einer spektralen Verbreiterung des Messsignals.

Eine weitere wichtige Eigenschaft ist die strahlende Lebensdauer eines Exzitons im Quantenpunkt, welche ein Maß dafür ist, wie viele Photonen pro Zeit erzeugt werden können. Während für InAs-Quantenpunkte Werte größer als eine Nanosekunde gemessen wurden [144], ist die Lebensdauer aufgrund der höheren Oszillatorstärke im II-VI-Materialsystem mit 230 bis 500 ps deutlich reduziert [55, 56, 58, 142, 145]. Diese geringeren Lebensdauern ermöglichen einen Betrieb mit höheren Wiederholraten und damit die Erzeugung von mehr Photonen pro Zeiteinheit als im Fall der InAs-Quantenpunkte.

Die diskrete Zustandsdichte in Quantenpunkten führt zu einer im Vergleich zu Quantenfilmen kleineren effektiven Ankopplung an akustische Phononen [58, 146]. Da die II-VI-Verbindungen gegenüber den InAs-Quantenpunkten eine höhere Polarität der Bindung aufweisen, ist die

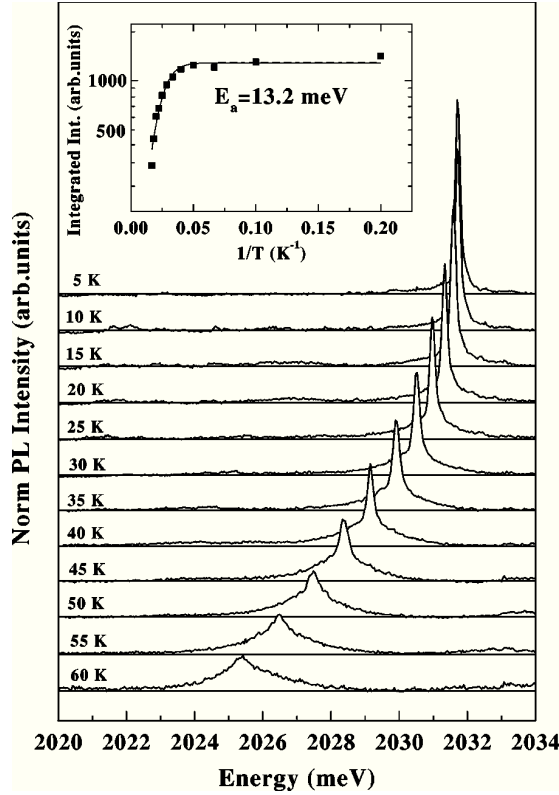


Abbildung 3.1: μ PL-Spektrum eines Cd-Te Quantenpunktes für verschiedene Temperaturen. Die einzelnen Messungen wurden auf die integrierte Intensität normiert. Im eingesetzten Bild ist die integrierte Intensität gegen die inverse Temperatur aufgetragen. Aus dem Verlauf lässt sich die Aktivierungsenergie zu 13.2 meV bestimmen [146].

Ankopplung an die Phononen und damit auch die spektrale Verbreiterung der Emissionslinie mit zunehmender Temperatur stärker ausgeprägt [147].

Diese Kopplung konnte im Jahr 2001 von *Besombes et al.* an Hand der Photolumineszenz eines einzelnen CdTe-Quantenpunktes beobachtet und durch die Ankopplung der diskreten exzitonischen Zustände an akustische Phononen des umgebenden Materials erklärt werden [146]. In Abbildung 3.1 ist die normierte PL-Intensität eines einzelnen CdTe-Quantenpunktes in Abhängigkeit von der Temperatur aufgetragen. Oberhalb von 40 K bilden sich durch die Ankopplung von akustischen Phononen Seitenbanden an der exzitonischen Emissionslinie aus, durch welche bei höheren Temperaturen die Halbwertsbreite der Emission bestimmt wird.

Durch temperaturabhängige PL-Untersuchungen konnte die exzitonische Emissionslinie eines einzelnen InGaN-Quantenpunktes bis 150 K verfolgt werden [148]. Für die Materialsysteme mit CdSe- bzw. GaN-Quantenpunkten wurde die exzitonische Emission bis zu einer Temperatur von 200 K verfolgt [60, 149]. Bei höheren Temperaturen verbreitert sich die exzitonische Emission durch die Ankopplung an Phononen deutlich. Diese verbreiterte Quantenpunkt-emission konnte 2007 von *Arians et al.* für einen CdSe-Quantenpunkt bis Raumtemperatur detektiert werden konnte [108].

Durch eine Anpassung der temperaturabhängigen PL-Intensität einer Quantenpunkt-emission lässt sich die thermische Aktivierungsenergie bestimmen. Für einzelne CdSe-Quantenpunkte wurden Aktivierungsenergien von 26 meV [60], für einzelne InGaN-Quantenpunkte von 15 meV gemessen [64]. Für das Quantenpunktensemble, dessen Lumineszenz auch bei höheren Temperaturen noch detektierbar ist, wurden Werte von bis zu 170 meV für InGaN-Quantenpunkte [48] und für CdSe-Quantenpunkte mit zusätzlichen MgS-Barrieren Werte von bis zu 70 meV erreicht [65].

Aufgrund der kleineren dielektrischen Konstanten und der größeren Bandlücke im Vergleich zum GaAs-Materialsystem besitzt das II-VI-Materialsystem eine höhere Exzitonenbindungsenergie, wodurch sich CdSe-Quantenpunkte für Studien an eingeschlossenen Exzitonenkomplexen auszeichnen [150]. Für die Bindungsenergie von Biexzitonen in CdSe-Quantenpunkten wurden Werte zwischen 18.5 und 25 meV ermittelt [150–153], welche etwa eine Größenordnung über dem Wert von wenigen Millielektronenvolt für InAs-Quantenpunkte liegen [147].

Durch eine erhöhte Anregungsdichte können zudem höhere Zustände des Quantenpunktes besetzt werden. *Rambach et al.* detektierten den ersten angeregten Zustand eines CdSe-Quantenpunktes als eine schmale Resonanz, welche sich je nach Quantenpunkt in einem Abstand von 23 bis 59 meV über dem exzitonen Grundzustand befindet [154]. Da bei erhöhten Anregungsdichten häufig keine Emission aus diesen höheren Zuständen detektiert wird, wird von einer Depopulation dieser Zustände durch Auger-Streuprozesse ausgegangen. Die meist asymmetrische Form der Quantenpunkte in der Wachstumsebene führt zur Aufhebung der Energieentartung des Valenzbandes [155] und dadurch zur Aufspaltung der exzitonen Emission in ein Dublett mit zwei orthogonal zueinander polarisierte Emissionslinien [156]. Im Fall von CdSe-Quantenpunkten werden für die Aufspaltung Werte von bis zu 0.8 meV erreicht [150].

Aufbauend auf den obigen Vorarbeiten konnte 2001 von *Klode et al.* an der Universität Bremen erstmals ein bei Raumtemperatur elektrisch betriebener Quantenpunkt-Laser im grünen Spektralbereich realisiert werden [13, 157]. Zur Vergrößerung des aktiven Materials wurde dazu ein Fünffach-Stapel aus CdSe-Quantenpunkten verwendet, welcher in ZnSSe-Barrieren eingebettet wurde. Für die Laserschwelle wurden Werte im Bereich von 32–59 kW/cm² ermittelt, welche damit vergleichbar zu dem Schwellenwert von Quantenpunktlaserstrukturen auf Basis der Gruppe-III-Arsenide sind [158].

Für die Gruppe-III-Nitride konnte in einer umfassenden Studie von *Wang et al.* 2007 erstmals eine Laseremission gezeigt werden, welche auf InGaN-Quantenpunkte zurückzuführen ist [159]. In früheren Arbeiten konnte nicht abschließend geklärt werden, ob die stimulierte Emission aus Quantenpunkten oder Quantenfilmen stammte [160, 161]. *Kalden et al.* gelang 2009 erstmals der Nachweis einer optischen Verstärkung an Nitrid-Mehrfach-Quantenpunktschichten. Aus der maximalen Verstärkung von $g_{mod}^{max} = 50 \text{ cm}^{-1}$ für eine Dreifach-Quantenpunktschicht konnte eine maximale Verstärkung pro Quantenpunkt von $g_{mod}^{max}/\text{QD} = 10^{-9} \text{ cm}^{-1}$ abgeschätzt werden. Damit liegt die Verstärkung pro Quantenpunkt im Bereich oder sogar oberhalb der Werte, die für CdSe oder III-As Quantenpunkte erreicht werden [162].

Einzelphotonenemission

Neben dem Einsatz als aktives Material in Laserstrukturen bieten sich Quantenpunkte wegen ihres zeitlich abstandshaltenden Emissionsverhaltens auch für die Verwendung als Einzelphotonenquellen an (siehe Abschnitt 2.2.2). Die kommerzielle Einsatzfähigkeit solcher Quantenverschlüsselungssysteme konnte unter anderem durch die medienwirksame Übertragung eines mit Quantenkryptographie verschlüsselten Schecks 2004 oder das Versenden eines Schlüssels über die Distanz von 185 km im Jahre 2006 [163] nachgewiesen werden [164].

Die bisher eingesetzten Einzelphotonenquellen basieren hauptsächlich auf der Verwendung von InAs-Quantenpunkten. Mit diesen konnten *Michler et al.* 2000 eine Einzelphotonenquelle realisieren, welche annähernd für jeden äußeren optische Anregungspuls exakt ein Photon emittiert und damit eine nahezu perfekte optisch getriggerte Einzelphotonenquelle

darstellt [61]. Nur wenig später konnten *Yuan et al.* die erste elektrisch betriebene Einzelphotonenquelle präsentieren [107]. Wegen der geringen Aktivierungsenergie der verwendeten InAs-Quantenpunkte sind daraus hergestellte Einzelphotonenquellen jedoch auf tiefe Temperaturen beschränkt und dadurch für den kommerziellen Einsatz nur bedingt geeignet.

Die Entwicklung von elektrisch betriebenen Einzelphotonenquellen auf ZnSe- oder Nitrid-Basis, welche für Anwendungen bei hohen Temperaturen vorteilhafter wären, befindet sich noch in den Anfängen. So wurden die erste Elektrolumineszenzmessungen bei Raumtemperatur an CdSe-Quantenpunkte 2008 publiziert [165, 166]. Für die Nitrid-basierten Quantenpunkte konnte ebenfalls 2008 die erste Elektrolumineszenz an einzelnen Quantenpunkten vorgestellt werden [167].

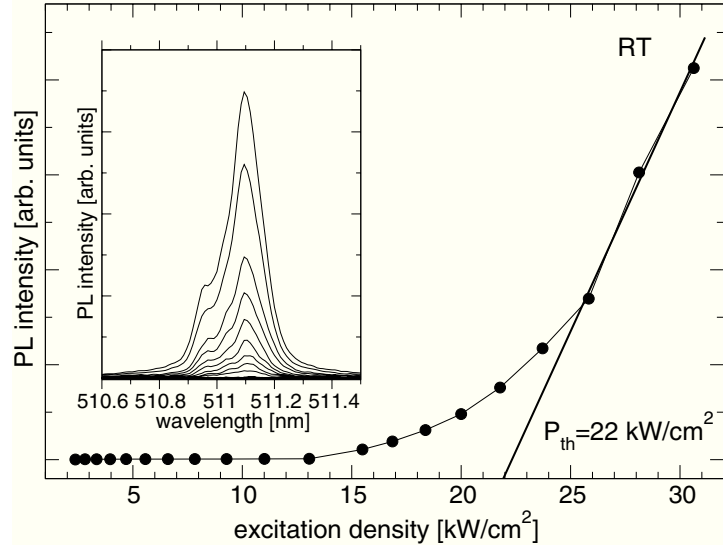
Der Nachweis einer Einzelphotonenquelle erfolgt in der Regel über die Autokorrelation des emittierten Lichts [60–62, 109], wobei der in Abschnitt 2.2.2 beschriebene Aufbau nach *Hanbury-Brown* und *Twiss* die gängigste Methode ist [59]. In den letzten Jahren sind jedoch auch weitere Methoden zur Messung der Autokorrelation erfolgreich angewandt worden. So verwendeten *Kardynal et al.* Avalanche-Photodioden, um die Anzahl der auftreffenden Photonen zu zählen [168]. Ein weiteres Verfahren ist die Verwendung einer im Einzelphotonenmodus operierenden Streak-Kamera. Mit dieser Technik konnten *Aßmann et al.* 2009 Korrelationen bis zur vierten Ordnung bestimmen [169].

3.2 Vertikalresonatoren

Als Alternative zu den kantenemittierenden Lasern wurden von *Iga et al.* Ende der 70er Jahre vertikal emittierende Laser vorgeschlagen (*engl.: vertical-cavity surface-emitting laser*, VCSEL). Bei diesen VCSELn wird das Licht durch Vertikalresonatoren senkrecht zur aktiven Schicht geführt und aus der Oberfläche der Probe ausgekoppelt. Aufgrund des Aufbaus können sie durch einen voll monolithischen Wachstumsprozess hergestellt werden. Bedingt durch eine Resonatorlänge im Bereich der Wellenlänge des Lichts wird ein vertikaler Monomodenbetrieb erreicht. Industriell vorteilhaft ist zudem, dass eine Überprüfung der Funktionsfähigkeit direkt auf dem Chip möglich ist [170]. Die erste Laseremission aus VCSELn konnte bereits kurz nach der Idee zum vertikalen Kavitätsdesign durch *Soda et al.* realisiert werden [171]. Ein bei Raumtemperatur kontinuierlich emittierender Laser konnte jedoch erst 1989 von *Koyama et al.* hergestellt werden [172]. Im Bereich der spontanen Emission unterhalb der Laserschwelle besitzen die VCSEL-Strukturen den Vorteil einer gerichteten Auskopplung des Lichts aus dem Halbleitermaterial sowie einer Verstärkung der Licht-Materie-Wechselwirkung durch den Purcell-Effekt (siehe Abschnitt 2.4).

Die ersten Vertikalresonatoren wurden aus dem Materialsystem AlAs/GaAs hergestellt, mit dem wegen der geringen Gitterfehlanpassung ein verspannungsfreies Schichtwachstum bis zu Dicken von mehreren Mikrometern möglich ist. Dadurch können DBR-Spiegel mit einer großen Anzahl an Spiegelpaaren und damit einem hohen Reflexionsgrad hergestellt werden [173]. Mit diesem Materialsystem konnten bereits 1994 Vertikalresonatoren mit Q-Faktoren von etwa 10.000 erreicht werden [174], welche durch eine kontinuierliche Weiterentwicklung des Wachstums auf bis zu 165.000 verbessert wurden [175]. Ein lateraler optischer Einschluss durch den Einbau von Oxid-Aperturen ermöglichte zusätzlich zum vertikalen auch einen transversalen Monomodenbetrieb, wodurch die Schwellstromdichte weiter gesenkt werden konnte [176]. Aufgrund dieser langen und erfolgreichen Entwicklung von vertikal emittierenden Laserstrukturen werden GaAs-VCSEL inzwischen kommerziell eingesetzt und haben die

Abbildung 3.2: *PL-Intensität eines monolithischen planaren ZnSe-basierten VCSEL. Unter gepulster optischer Anregung konnte eine Laserschwelle von 22 kW/cm^2 bestimmt werden. Im eingesetzten Bild sind die von spektral scharfen Emissionslinien dominierten Spektren oberhalb der Schwelle zu sehen [105].*



Kantenemitter für optische Nachrichtenübertragung auf kurzen Strecken bereits verdrängt. Da für die ZnSe-basierten Kantenemitter 1994 eine stabile Laseremission bei Raumtemperatur erreicht werden konnte [177], wurden auch hier Versuche unternommen die Vorteile der VCSEL-Strukturen auszunutzen. Für die ZnSe-basierten monolithischen Mikrokavitäten gestaltete sich die Suche nach einer geeigneten Materialkombination für die DBR-Spiegel, welche bei gitterangepasstem Wachstum einen hohen Indexkontrast ermöglicht, jedoch wesentlich schwieriger als beim GaAs-Materialsystem. Die zunächst angedachte Materialkombination aus den Verbindungen ZnSSe und ZnMgSSe kann zwar voll verspannt gewachsen werden [178], jedoch ist der Indexkontrast mit $\Delta n = 0.12$ für einen sinnvollen Einsatz deutlich zu gering [179]. Die Erhöhung des Magnesiumanteils in der Niederindexschicht aus ZnMgSSe ist durch den strukturellen Übergang von der Zinkblendestruktur in die Kochsalzstruktur ab einer Konzentration von $x_{\text{Mg}} = 0.7$ begrenzt. Erst durch den Ansatz, die Niederindexschicht durch ein Übergitter (*engl.: superlattice*) aus den beiden Verbindungen ZnSe und MgS zu realisieren [180], konnten schließlich ein hoher Brechungsindexkontrast und ein pseudomorphes Wachstum vereint werden [181]. Mit dieser Methode konnten von *Kruse et al.* an der Universität Bremen erstmals Braggspiegel mit einem Indexkontrast von $\Delta n = 0.6$ gewachsen werden. Diese wiesen für 14 Braggpaare einen Reflexionsgrad von über 99 % auf [179, 182]. Für das Stoppband konnte bei einer variablen spektralen Lage der Kavitätsresonanz im Bereich zwischen 480 und 600 nm eine spektrale Breite von 65 nm erreicht werden [179]. Auf Basis dieser Braggspiegel konnte 2004 ebenfalls von *Kruse et al.* erstmals die stimulierte Emission einer monolithischen VCSEL-Struktur mit drei eingebetteten ZnCdSSe-Quantenfilmen bei Raumtemperatur gezeigt werden [183]. Aus der in Abbildung 3.2 dargestellten PL-Messungen konnte die Laserschwelle zu 22 kW/cm^2 bestimmt werden. Für diese Kavitäten aus 18.5 unteren und 15 oberen Spiegelpaaren wurden Q-Faktoren von etwa 3500 im Fall einer aktiven Schicht aus Quantenfilmen [64, 184] und von 8760 im Fall einer aktiven Schicht aus Quantenpunkten ermittelt [185].

Parallel zur Entwicklung von Mikroresonatoren basierend auf dem II-VI-Materialsystem wurde auch an Nitrid-basierten Bragg-Spiegeln geforscht. Für die ersten Spiegel wurde dabei eine Materialkombination von GaN als Hochindexschicht und AlGaIn als Niederindexschicht verwendet. Mit dieser Kombination konnten *Asif Khan et al.* 1991 erste Spiegel demonstrieren

[186]. Aufgrund des geringen Anteils an Aluminium und des damit verbundenen geringen Brechungsindexkontrastes lagen die Reflektivitäten jedoch unterhalb von 90 %. *Redwing et al.* demonstrierten 1996 eine monolithische Kavität mit zwei 30-fach DBR-Spiegeln und einer GaN-Schicht als aktivem Material, an welcher sie bei Raumtemperatur erstmalig Hinweise auf eine stimulierte Emission bei $\lambda = 363$ nm erhielten [187]. Die erste stimulierte Emission einer Nitrid-basierten Mikrokavität bei Raumtemperatur im blau-violetten Spektralbereich wurde ebenfalls 1996 von *Someya et al.* an einer hybriden Mikrokavität mit einem dielektrischen oberen Spiegel gezeigt [188]. Für diese Kavität wurden Q-Faktoren von 500 bestimmt. Durch eine Optimierung des Wachstums konnten AlGaIn/GaN-Spiegel mit Reflexionsgraden oberhalb von 99 % erreicht werden, für welche jedoch wegen des niedrigen Aluminiumgehalts 60 Spiegelpaare notwendig waren [189]. An einer voll monolithisch hergestellte AlGaIn/GaN-Kavität mit 30 unteren und 25 oberen Spiegelpaaren wurden von *Kruse et al.* für Säulenresonatoren mit 800 nm Durchmesser Q-Faktoren von 260 erreicht [190].

In einem alternativen Ansatz wird ebenfalls GaN als Hochindexschicht verwendet, die Niederindexschicht jedoch aus einem AlN/InGaIn-Übergitter hergestellt [191, 192]. Für eine VCSEL-Struktur mit 20.5 unteren und 18 oberen Spiegelpaaren konnten erfolgreich Säulenresonatoren hergestellt werden, welche in Photolumineszenzmessungen diskrete Moden aufwiesen. Für einen Säulendurchmesser von 1 μ m wurde ein Q-Faktor von 250 demonstriert [193].

Ein dritter Ansatz für die Nitrid-basierten Kavitäten besteht in der Verwendung von ternärem AlInN als Niederindexmaterial. Bei einem Indiumanteil von 17 % kann diese Schicht gitterangepasst zu GaN gewachsen werden. Mit dem Indexkontrast von $\Delta n \approx 0.2$ erreichten *Feltin et al.* 2005 für 40 Spiegelpaare eine maximale Reflektivität von 99.4 % [194]. Für eine auf diesen Spiegeln basierende Mikrokavität konnte ein Stoppband mit 25 nm Breite und eine Kavitätsresonanz mit einer spektralen Breite von 2.3 nm erreicht werden [173]. Die maximalen in Transmission bestimmten Q-Faktoren besitzen Werte von 2800 für eine leere Kavität [195] und 1400 für eine Kavität mit eingebettetem InGaIn-Quantenfilm [196].

Aufgrund der gegenüber ZnSe-Verbindungen reduzierten Kristallqualität und stärkeren Leckmoden sind die Nitrid-basierten Kavitäten den ZnSe-basierten Kavitäten noch unterlegen. Im Gegensatz zum II-VI-Materialsystem konnten bisher noch keine monolithisch hergestellten Säulenresonatoren mit einer eingebetteten InGaIn-Quantenpunktschicht vorgestellt werden. Ein aktueller Überblick über das Wachstum von Nitrid-basierten VCSEL-Strukturen wird in [197], über die optischen Eigenschaften in [O3] gegeben.

3.2.1 Zirkulare Säulenresonatoren

Die ersten zirkularen Säulenresonatoren wurden Ende der 80er Jahre mittels Ätzverfahren aus planaren Resonatoren hergestellt [198, 199]. Die zusätzliche Totalreflexion an den Seitenwänden der Säulenresonatoren führt zu einem dreidimensionalen optischen Einschluss und damit zur Entstehung diskreter Moden. Diese ersten Strukturen waren für Laser mit niedrigeren Schwellströmen oder schnelle optische Schalter gedacht. Eine experimentelle Demonstration dieser geringeren Schwellströme gelang 1987 durch *Iga et al.*, welche eine gegenüber der planaren Struktur um den Faktor 2 reduzierte Schwelle bei Verwendung von Säulenresonatoren zeigen konnten [200].

Ein experimenteller Nachweis der Modenstruktur wurde sowohl durch Reflexionsmessungen [80, 201] wie auch durch Photolumineszenzmessungen erbracht, bei welcher die Moden mittels einer internen Lichtquelle aus Quantenpunkten ausgeleuchtet wurden [202].

Durch einen Vergleich der Q-Faktoren der fundamentalen Mode für Säulenresonatoren mit

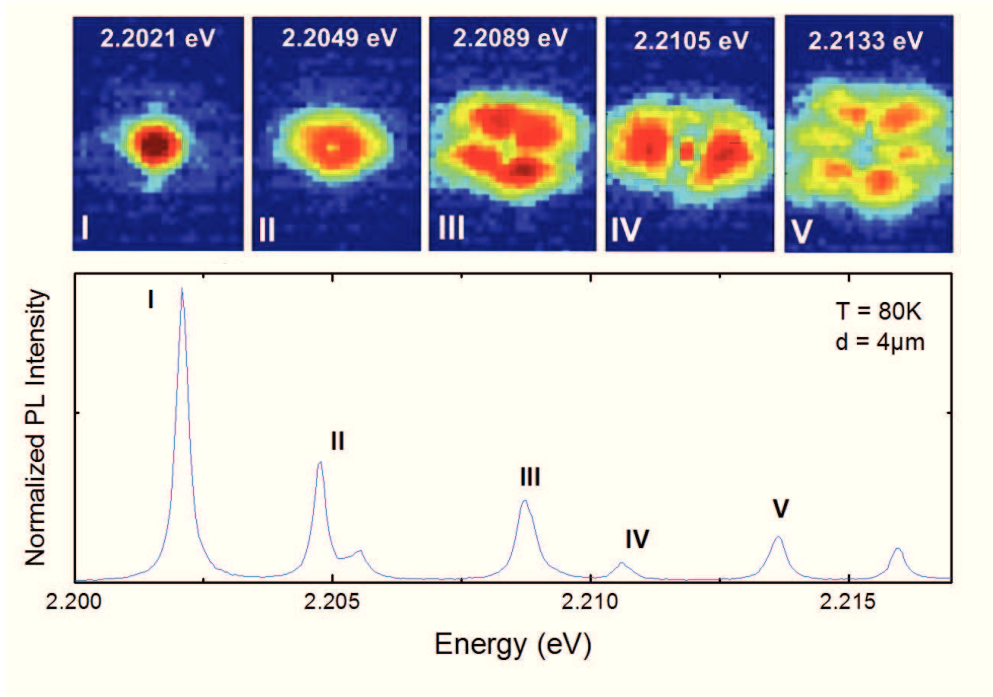


Abbildung 3.3: Photolumineszenzspektrum eines zirkularen Säulenresonators ($d = 4\mu\text{m}$, $T = 80\text{K}$) sowie experimentell bestimmte interne Modenverteilung. Daten aus [205].

unterschiedlichem Durchmesser wurde in mehreren Arbeiten eine Verringerung der Güte des optischen Einschlusses mit abnehmendem Säulendurchmesser festgestellt [77, 80, 201]. *Rivera et al.* erklärten diese Abnahme durch eine bei reduziertem Durchmesser verstärkte Streuung an den Seitenwänden der Säulenresonatoren, welche zu größeren Verlusten und damit zu einem kleineren Q-Faktor führt. Als charakteristischer Durchmesser, unterhalb welchem dieser Effekt zum Tragen kommt, wurde sowohl für GaAs- wie auch ZnSe-basierte Mikrokavitäten ein Wert von etwa $1.5\mu\text{m}$ bestimmt [76, 203].

Sanvitto et al. gelang 2005 eine räumliche Darstellung der Feldverteilung der transversalen optischen Modenverteilung in GaAs-basierten Säulenresonatoren [204]. Die Autoren konnten damit für die Grundmode die erwartete gaußförmige Intensitätsverteilung experimentell nachweisen und für höhere Moden eine wachsende Anzahl an azimuthalen Feldstärkeknöten detektieren. Zudem konnte eine zunehmende Lokalisierung der höheren Moden in der Nähe der Seitenwände der Säulenresonatoren gezeigt werden. Für ZnSe-basierte Mikrokavitäten konnte *T. Meeser* während seiner Diplomarbeit am *Institut für Festkörperphysik* der Universität Bremen erstmals eine experimentell ermittelte zweidimensionale Darstellungen der optischen Feldverteilung in Säulenresonatoren präsentieren. Die erhaltene Intensitätsverteilung für die fünf niederenergetischsten Moden eines Säulenresonators ($d = 4\mu\text{m}$, $T = 80\text{K}$) ist in Abbildung 3.3 aufgetragen [205]. Sowohl die gaußförmige Intensitätsverteilung der Grundmode wie auch die zunehmend höhere Intensität in der Nähe der Seitenwände für die höheren Moden sind gut erkennbar.

3.2.2 Purcell-Effekt und Auskoppelleffizienz

Säulenresonatoren sind nicht nur für den Einsatz in VCSELn interessant, sondern erlauben auch das Studium der Licht-Materie Wechselwirkung im Fall der spontanen Emission. Hierbei ist besonders die mögliche Verkürzung der Lebensdauer eines angeregten Zustandes, der sogenannte Purcell-Effekt [86], zu erwähnen. Der erste experimentelle Nachweis des Purcell-Effektes in Mikrokavitäten konnte 1998 durch *Gérard et al.* erbracht werden [77]. Dafür wurden aus einer planaren GaAs/AlAs-Mikrokavität mit einem eingebetteten Fünffach-InAs-Quantenpunktstapel zirkulare Säulenresonatoren mit Durchmessern im Bereich von $0.7\,\mu\text{m}$ bis $40\,\mu\text{m}$ prozessiert. Durch die hohe Dichte der Quantenpunkte trugen selbst in dem Säulenresonator mit dem geringsten Durchmesser immer noch etwa 30 Quantenpunkte zur Emission bei. Mit zeitaufgelösten Messungen konnte eine fünffach verkürzte strahlende Lebensdauer für Emitter, die in die Fundamentalmode einkoppeln, im Vergleich zu denjenigen, die in Leckmoden einkoppeln, bestimmt werden. Die Lebensdauern der in die Leckmoden einkoppelnden Zustände unterschieden sich nur unwesentlich von der strahlenden Lebensdauer von Zuständen der unstrukturierten Probe.

In weiteren Studien der Lebensdauer strahlender Rekombinationsprozesse konnten *Böckler et al.* ebenfalls auf GaAs-Basis einen effektiven Purcell-Faktor von $F_P^{\text{eff}} = 10$ für eine elektrisch gepumpte Kavität erhalten [206]. In dieser Arbeit werden sowohl die Güte des Resonators wie auch die räumliche und spektrale Verstimmung des Quantenpunktes zur Kavitätsmode als begrenzende Faktoren für den Purcell-Effekt genannt.

Für ZnSe-basierte Mikrokavitäten konnten durch zeitaufgelöste Untersuchungen an der Universität Bremen effektive Purcell-Faktoren von $F_P^{\text{eff}} = 3.8$ nachgewiesen werden [64, 76].

Durch den Purcell-Effekt ist nicht nur eine Verkürzung der spontanen Lebensdauer möglich, sondern, wie von *Bayer et al.* 2001 gezeigt, auch eine Verlängerung [85]. Hierzu wurden die Seitenflächen von Säulenresonatoren mit einer Metallschicht verspiegelt und dadurch die Ankopplung an Verlustmoden unterdrückt. Auf diese Weise konnte eine Verlängerung der spontanen Lebensdauer um etwa eine Größenordnung erzielt werden.

Wie in Abschnitt 2.4.1 dargestellt, lässt sich die Kopplung zwischen Quantenpunkt und Kavitätsmode für den Fall der spektralen Resonanz von Emission und Mode und des räumlichen Überlapps der optischen Felder deutlich erhöhen. Durch eine verbesserte spektrale Abstimmung der Emission des Quantenpunktes und der Kavitätsmode konnte die Auskoppelleffizienz aus CdSe-Quantenpunkten deutlich verbessert werden [64, 207].

Eine weitere Möglichkeit die Auskopplung aus einer Kavität zu erhöhen ist die Ausnutzung der Abhängigkeit der spektralen Lage der Resonatormoden vom Durchmesser des Säulenresonators. Damit konnten *Lohmeyer et al.* durch ein nachträgliches Anpassen des Säulendurchmessers die Quantenpunktemission um einen Faktor von 4.8 verstärken [64]. Im Gegensatz zur Temperaturabstimmung ist diese Methode jedoch irreversibel und nur möglich, falls die Quantenpunktemission im Vergleich zur spektralen Lage der Kavitätsmode höherenergetisch liegt.

Eine räumliche Abstimmung von Quantenpunkt und Mikrokavität kann durch ein gezieltes Wachstum der Quantenpunkte an vordefinierten Plätzen erfolgen [208, 209]. Die Säulenresonatoren werden dann um die vorgegebenen Stellen herum prozessiert. Alternativ wurden von *Lee et al.* die Idee der Kartographierung der planaren Probe und der Markierung von Quantenpunkten aufgebracht [210]. Anschließend werden die Säulenresonatoren um die markierten Stellen prozessiert. Diese Methode wird inzwischen von verschiedenen Gruppen erfolgreich eingesetzt [211–213].

3.2.3 Elliptische Säulenresonatoren

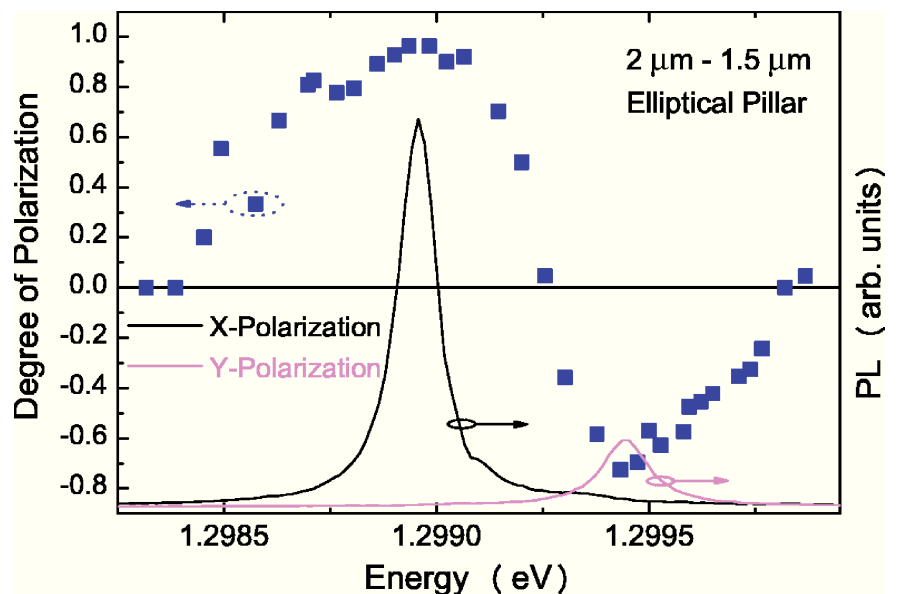
Erste Überlegungen die Polarisationsentartung eines Säulenresonators aufzuheben, basierten auf der von polarisationserhaltenden Fasern bekannten Idee eines asymmetrischen Querschnitts [214]. Die ersten VCSEL mit einem solch asymmetrischen Querschnitt wurden 1994 von *Choquette et al.* hergestellt und hatten eine rhomboedrische sowie hantelförmige Form [215], wobei auch erstmalig VCSEL mit elliptischem Querschnitt vorgeschlagen wurden. Mit diesen VCSELn mit asymmetrischen Querschnitten konnte eine polarisierte Laseremission erreicht werden. Die Polarisationsaufspaltungen lagen dabei jedoch nur in einer Größenordnung von 10^{-2} meV.

Erst mit der Arbeit von *Gayral et al.*, welcher die von *Choquette et al.* vorgeschlagenen elliptischen Querschnitte experimentell umsetzte, konnten deutlich größere Aufspaltungen realisiert werden [21]. In einer systematischen Studie der spektralen Lage der fundamentalen Mode sowie der Polarisationsaufspaltung in Abhängigkeit von der Elliptizität wurden Werte für die Aufspaltung von bis zu 15 meV für das GaAs-Materialsystem erzielt.

Weitere Untersuchungen zu elliptischen GaAs-basierten Säulenresonatoren wurden hauptsächlich in der Gruppe von *M. S. Skolnick* durchgeführt [22, 216]. Durch eine Temperaturvariation konnte die Emission eines einzelnen InAs-Quantenpunktes spektral durch die beiden Komponenten der Fundamentalmode geschoben werden (Abb. 3.4). Durch die von der spektralen Lage der Emission abhängige Kopplung zwischen Quantenpunkt und Mode konnte der Polarisationsgrad der Quantenpunktemission zwischen 70 % in x-Richtung und annähernd 100 % in y-Richtung polarisiert durchgestimmt werden [22]. In der selben Arbeit wurde erstmals die interne räumliche Feldverteilung der Moden für elliptische Säulenresonatoren untersucht. Durch eine Variation der Elliptizität konnte eine systematische Veränderung der spektralen Reihenfolge der Moden nachgewiesen werden. Die erstmals in [217] ermittelten unterschiedlichen Q-Faktoren für die orthogonalen Polarisationsrichtungen wurden von *Whittaker et al.* systematisch für verschiedene Elliptizitäten untersucht und auf die Polarisationsabhängigkeit der Verluste in den DBR-Spiegeln zurückgeführt [216]. Da die Q-Faktoren der elliptischen Säulenresonatoren für eine Polarisationsrichtung entlang der längeren Achse die Q-Faktoren von zirkularen Mikrokavitäten mit gleicher Querschnittsfläche

Abbildung 3.4:

Veränderung des Polarisationsgrades (Quadrate) der Emission aus dem Quantenpunkt in Relation zur spektralen Lage des Quantenpunktes bei Durchstimmung durch die beiden orthogonal polarisierten Komponenten der Fundamentalmode [22].



um einen Faktor von 2 übertrafen, wurden elliptische Säulenresonatoren wegen ihres entsprechend größeren Q/\sqrt{V} -Verhältnisses zum Erreichen der starken Kopplung vorgeschlagen.

Unitt et al. führten 2005 Untersuchungen zur Lebensdauer der orthogonal polarisierten Zustände eines Exziton-Doublets durch. Da nur einer der beiden Polarisationszustände spektral in Resonanz zur entsprechend polarisierten Kavitätsmode war, wurde für die beiden orthogonal polarisierten Emissionen aus dem Quantenpunkt unterschiedliche Purcell-Faktoren bestimmt [218].

Diese Ergebnisse zeigen das Potential von in elliptischen Mikrokavitäten eingebetteten Quantenpunkten zur Verwendung als polarisiert emittierende Einzelphotonenquellen, wobei der Einsatz der untersuchten InGaAs-Quantenpunkte wegen ihres vergleichsweise geringen elektrischen Einschlusses auf tiefe Temperaturen beschränkt ist. Ein Überblick über diese Ergebnisse ist in [219] gegeben.

3.2.4 Gekoppelte Säulenresonatoren

Wie bereits im letzten Abschnitt erwähnt, wurde erstmals 1994 von *Choquette et al.* eine hantelförmige Struktur aus zwei gekoppelten Mikrokavitäten hergestellt und spektroskopisch untersucht [215]. Das Interesse galt dabei jedoch nicht dem Studium des Kopplungsverhaltens, sondern allein der Aufhebung der Polarisationsentartung der fundamentalen Mode zur Erzeugung von polarisiert emittierenden VCSELn.

Die erste auf das Kopplungsverhalten zweier Mikrokavitäten angelegte Studie an Säulenresonatoren wurde 1998 von *Bayer et al.* durchgeführt [220]. Dabei wurden zwei GaAs-basierte Säulenresonatoren mit quadratischem Querschnitt durch eine Verbindung aus Halbleitermaterial gekoppelt und das PL-Spektrum in Abhängigkeit von der Breite und Länge des verbindenden Stegs untersucht. Es konnte eine Zunahme der Kopplungsstärke mit abnehmendem Abstand der einzelnen Säulenresonatoren sowie mit zunehmender Stegbreite beobachtet werden. Diese Kopplung zweier Mikroresonatoren äußerte sich in der Ausbildung von neuen optischen Zuständen. So spaltet die fundamentale Mode mit breiter werdendem Verbindungssteg, und damit stärker werdender Kopplung, in zwei unterschiedliche Moden auf, die erste höhere Mode gar in vier verschiedene optische Zustände. Die erhaltenen optischen Moden wurden in Analogie zu den Molekülzuständen eines zweiatomigen Moleküls betrachtet und entsprechenden Molekülorbitalen zugeordnet. Auf diese Analogie bezieht sich auch die im Folgenden verwendete Bezeichnung *Photonisches Molekül* für ein gekoppeltes System aus zwei Mikroresonatoren. Durch winkelaufgelöste Messungen wurde die berechnete interne optische Feldverteilung bestätigt. In einer weiterführenden Arbeit wurde ebenfalls von *Bayer et al.* die Kopplung von mehreren Säulenresonatoren in einer linearen Kette optisch untersucht und die Ausbildung einer optischen Bandlücke beobachtet [221]. Ein erster direkter Nachweis der internen optischen Feldverteilung in gekoppelten Systemen aus Säulenresonatoren gelang *Zhuk et al.* durch konfokale Mikroskopie [222]. Weitere Studien zum Kopplungsverhalten von vier Säulenresonatoren in unterschiedlichen Anordnungen sind auch in [223] zu finden. Ein Überblick über die Arbeiten zu gekoppelten Säulenresonatoren bis zum Jahr 2002 ist in [224] gegeben.

Zur Kopplung von zwei räumlich getrennten Quantenpunkten, welche in den Zentren der beiden Säulenresonatoren eines photonischen Moleküls denkbar sind, sind neben den bisher beschriebenen symmetrischen auch asymmetrische Zustände notwendig. Solche asymmetrischen optischen Zustände wurden erstmals von *Karl et al.* an photonischen Molekülen mit unterschiedlichen Durchmessern der beiden Säulenresonatoren untersucht [225]. Dabei

konnte indirekt durch eine ortsabhängige Anregung die Koexistenz von über das gesamte photonische Molekül delokalisierten Zuständen und in den einzelnen Säulenresonatoren lokalisierten Zuständen in den PL-Spektren nachgewiesen werden [226]. Die bisherigen Untersuchungen zu gekoppelten Säulenresonatoren wurden allesamt auf GaAs-basierten Proben durchgeführt.

Außer an den beschriebenen quadratischen bzw. zirkularen Säulenresonatoren wurden Kopplungsphänomene an vielen weiteren Systemen wie z. B. an pyramidalen Säulenresonatoren [227], an Mikrodiscs [228, 229] sowie an Defekten in photonischen Kristallen [230, 231] untersucht.

3.3 Starke Kopplung und polaritonisches Lasing

Die ersten Studien über die starke Kopplung in Mikrokavitäten gehen auf Arbeiten von *Weisbuch et al.* aus dem Jahr 1992 zurück. Dieser konnte die starke Kopplung in GaAs-basierte Mikrokavitäten durch Reflexionsmessungen bei tiefen Temperaturen nachweisen [16]. Wenig später konnten *Houdré et al.* ebenfalls für GaAs-basierte Kavitäten mit sechs InGaAs-Quantenfilmen bei 77 K eine Rabi-Aufspaltung von $\Omega = 8.8 \text{ meV}$ messen und erstmals die starke Kopplung bis Raumtemperatur verfolgen [232]. Durch winkelaufgelöste Studien gelang kurz darauf die Messung der Dispersionsrelation des oberen und unteren Polaritonenzweiges [233]. Da die Rabi-Aufspaltung durch die verhältnismäßig geringe Oszillatorstärke der Arsenidverbindungen begrenzt ist, wurden zum Erreichen von größeren Rabi-Aufspaltungen breitlückige Halbleiter wie CdTe und GaN mit größeren Oszillatorstärken vorgeschlagen. So konnten *Kelkar et al.* 1995 mit einer Mikrokavität bestehend aus drei ZnCdSe-Quantenfilmen bei einer Temperatur von 50 K eine Rabi-Aufspaltung von $\Omega = 17.5 \text{ meV}$ messen [110]. Dies entspricht nach $\Omega \propto \sqrt{N}$ mit N als Anzahl der Quantenfilme einer Aufspaltung von etwa 10 meV pro Quantenfilm, womit die Rabi-Aufspaltung pro Quantenfilm um etwa einen Faktor drei größer ist als bei den von *Houdré et al.* untersuchten InGaAs-Quantenfilmen.

Imamoglu et al. schlugen 1996 vor, den bosonischen Charakter der Polaritonen für einen neuartigen Laser mit einer gegenüber den herkömmlichen VCSELN deutlich reduzierten Laserschwelle auszunutzen, welchen sie als polaritonischen Laser bezeichneten [19, 20]. Bereits zwei Jahre später wurde an einer CdTe-basierten Probe eine stimulierte Emission im Bereich der starken Kopplung nachgewiesen [18]. *Le Si Dang et al.* stellten bei einer Erhöhung der Anregungsleistung bei nicht-resonanter Anregung einen sprunghaften Anstieg der PL-Intensität an der spektralen Position des unteren Kavitätpolaritons fest. Eine weitere Erhöhung der Anregungsintensität führte zur Ausbildung einer zweiten Emissionslinie an der spektralen Position des Quantenfilm-Exzitons, was als ein Aufbrechen der starken Kopplung und Übergang in den Bereich der schwachen Kopplung gedeutet wurde. Bei noch stärkerer Anregung konnte auch für den Bereich der schwachen Kopplung eine Laserschwelle für das photonische Lasing festgestellt werden. In Abbildung 3.5 sind die entsprechenden, auf die Anregungsleistung normierten PL-Spektren mit den beiden Laserlinien für das polaritonische Lasing (Linie A) und das photonische Lasing (Linie B) sowie ein Reflexionsspektrum mit den jeweiligen Minima an den spektralen Positionen des unteren und oberen Kavitätpolaritons dargestellt. Das GaN-Materialsystem wurde wegen der ebenfalls recht hohen Oszillatorstärke als Material für polaritonisches Lasing bei Raumtemperatur vorgeschlagen [234], welches dann wenig später von *Christopoulos et al.* auch nachgewiesen werden konnte [94]. In einer hybriden Kavität mit einer GaN-Abstandsschicht konnte bei Raumtemperatur eine Laserschwelle von

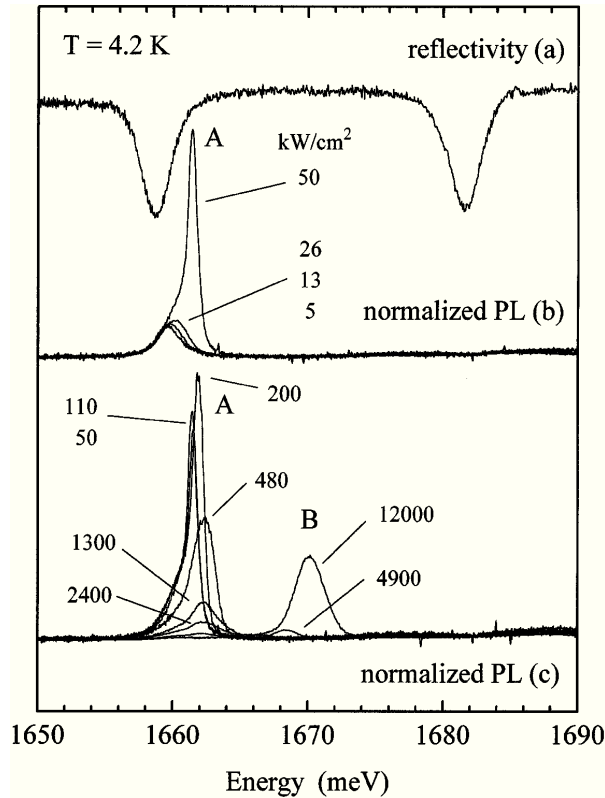


Abbildung 3.5: (a) Reflexionsspektrum der planaren Kavität. (b) PL-Spektren für verschiedene Anregungsdichten. Die Spektren sind auf die jeweiligen Anregungsdichten normiert. Die als A gekennzeichnete Linie zeigt eine stimulierte Emission an der spektralen Position des unteren Polaritons. (c) Die Linie B zeigt eine stimulierte Emission im Bereich der schwachen Kopplung an der spektralen Position des Quantenfilm-Exzitons. Messungen für 4.2 K [18].

$29 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ für das polaritonische Lasing bestimmt werden, welche eine Größenordnung unter der Laserschwelle der besten optisch gepumpten InGa_N-QW-VCSEL liegt [235]. Aufgrund der größeren Oszillatorstärke von Quantenfilmen im Vergleich zu einzelnen Quantenpunkten [92] wurden für diese ersten Arbeiten stets Quantenfilme oder Volumenmaterialien verwendet. Im Jahr 2004 gelang jedoch zwei Gruppen auch der Nachweis der starken Kopplung für einen einzelnen in einen Säulenresonator eingebetteten Quantenpunkt [17, 82]. Der Bereich der starken Kopplung wurde auch für weitere Mikrokavitäten wie photonische Kristalle [236] und Mikrodiscs [237] erreicht. Weiterhin ermöglicht das Regime der starken Kopplung auch Untersuchungen an Bose-Einstein-Kondensaten von Exziton-Polaritonen in Mikrokavitäten. Aufgrund der im Vergleich zu Atomen sehr geringen Polaritonenmasse lässt sich ein solches Kondensat mit Polaritonen bereits bei wesentlich höheren Temperaturen wie mit Atomen erreichen [93].

4 Experimentelle Methoden

Dieses Kapitel gibt ein Überblick über die verwendeten Proben, deren Strukturierung sowie die experimentellen Messmethoden. Dazu wird im ersten Abschnitt auf die Herstellung der Proben mittels der Verfahren der Molekularstrahlepitaxie sowie der metallorganischen Gasphasenepitaxie eingegangen. Es folgt ein Abschnitt über die Prozessierung der Säulenresonatoren mit fokussierten Ionenstrahlen, mit welchen die in den Abschnitten 5 bis 8 untersuchten Proben strukturiert wurden. Anschließend werden die zur Untersuchung der Photolumineszenzeigenschaften verwendeten experimentellen Aufbauten geschildert. Im letzten Abschnitt wird noch auf die Grundlagen der beiden benutzten Simulationsprogramme eingegangen, welche zur Berechnung der Reflexionsspektren sowie der internen optischen Feldverteilung in Mikrostrukturen zum Einsatz kamen.

4.1 Herstellung und Struktur der Proben

Die in dieser Arbeit untersuchten Proben wurden in der von *Prof. Dr. Hommel* geleiteten Arbeitsgruppe Halbleiterepitaxie am *Institut für Festkörperphysik* der Universität Bremen hergestellt. Dabei kamen die beiden prinzipiell verschiedene Methoden der Molekularstrahlepitaxie (*engl.: molecular beam epitaxy*, MBE) und der metallorganischen Gasphasenepitaxie (*engl.: metal-organic vapor-phase epitaxy*, MOVPE) zum Einsatz. Die MBE erlaubt das hochpräzise Abscheiden von einzelnen Monolagen. Da die Quellen jeweils nur ein chemisches Element beinhalten, besitzen die so hergestellten Schichten bei einer entsprechenden Reinheit der Ausgangsmaterialien ebenfalls eine sehr hohe Reinheit. Für die Verwendung der MOVPE spricht dagegen die einfachere Wartung da diese ohne aufwändige Hochvakuum- und Kühlsysteme auskommt. Die höheren Durchsatzraten der MOVPE lassen diese zudem für den industriellen Einsatz deutlich attraktiver scheinen als die MBE.

Die II-VI-Proben wurden unter Leitung von *Dr. Carsten Kruse* mittels MBE hergestellt, die Nitrid-basierten Proben unter Federführung von *Dr. Stephan Figge* mittels MOVPE.

4.1.1 Monolithische II-VI-Vertikalresonatoren

Aufgrund der geringen Gitterfehlانpassung von nur 0.27 % [157] werden die II-VI-Proben bei einer Temperatur von 280 °C direkt auf einem (111)-GaAs Substrat gewachsen. Bevor das Wachstum der eigentlichen Struktur beginnt, wird auf dem GaAs-Substrat zunächst eine 10 nm dicke ZnSe-Schicht aufgebracht. Diese Zwischenschicht ist trotz der geringen Gitterfehlانpassung zur Vermeidung von Stapelfehlern und Versetzungen beim Übergang von einer III-V-Verbindung zu einer II-VI-Verbindung notwendig. Da die unterschiedlichen Materialien aus verschiedenen Richtungen auf die Probe auftreffen, muss für ein homogenes Schichtwachstum die Probe während des Wachstums rotiert werden. Auf die ZnSe-Zwischenschicht wird eine Schicht mit niedrigem Brechungsindex n_l und einer reduzierten Schichtdicke aufgebracht, so dass beide Schichten zusammen eine Dicke von etwa $\lambda_B / 4n_l$ mit λ_B als Bragg-Wellenlänge aufweisen. Auf die Schicht mit niedrigem Brechungsindex folgen 18 Bragg-Paare des unteren

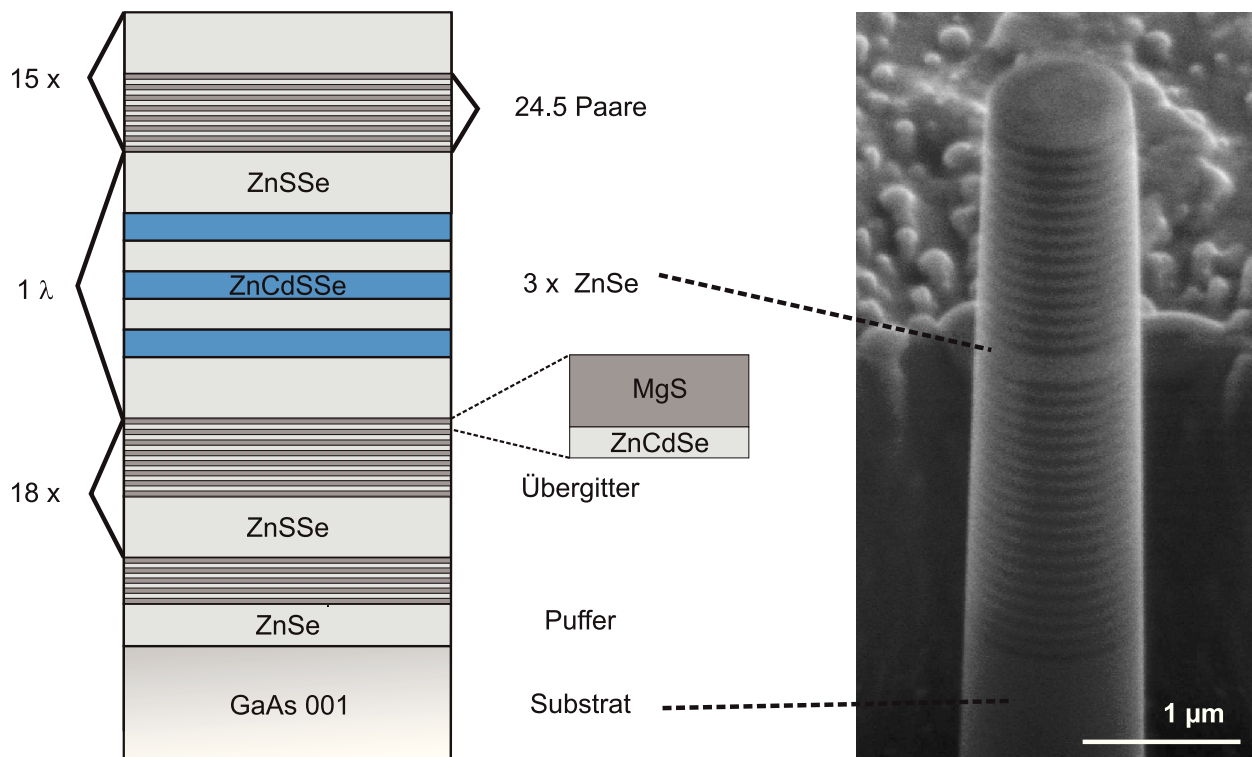


Abbildung 4.1: Linke Seite: Schematischer, nicht maßstabsgetreuer, Aufbau der ZnSe-basierten VCSEL-Struktur. Bei sonst gleichem Aufbau wurden als aktive Schicht entweder drei ZnCdSse-Quantenfilme oder eine Schicht aus CdSe/ZnSe-Quantenpunkten verwendet. Rechte Seite: REM-Aufnahme eines mittels FIB prozessierten Säulenresonators. Die Schichtstruktur der beiden DBRs mit ZnSse (hell) als Hochindexschicht und dem Übergitter aus MgS/ZnCdSe (dunkel) als Niederindexschicht sowie die ZnSse- λ -Kavität sind deutlich erkennbar. Die Probe um 52° gegenüber der Säulenachse verkippt.

Bragg-Spiegels, die Kavität mit der optisch aktiven Schicht sowie der obere Bragg-Spiegel mit 15 Spiegelpaaren in umgekehrter Reihenfolge. Für die Hochindex-Schicht der Bragg-Spiegel wird ZnSSe mit etwa 6 % Schwefel gitterangepasst zu GaAs mit einer Schichtdicke von 48 nm benutzt. Für die Niederindex-Schicht böte sich MgS als Material mit der größten Bandlücke und dem kleinsten Brechungsindex an. Allerdings lässt sich MgS nur in sehr dünnen Schichten stabil in der Zinkblendestruktur wachsen und geht für dickere Schichten in die Kochsalzstruktur über. Daher findet für die Niederindex-Schichten ein kurzperiodischer Übergitteransatz (*engl.: superlattice*) Verwendung, bei welchem abwechselnd 1.9 nm MgS gefolgt von 0.6 nm ZnCdSe mit etwa 15 % Cadmiumanteil aufgebracht werden. Durch diesen Ansatz ist es gelungen MgS in der gesamten Mikrokavität in der Zinkblendestruktur zu stabilisieren [238]. Insgesamt besteht das Übergitter aus 24.5 solcher Schichten mit einer Gesamtdicke von etwa 61 nm. Durch die im Vergleich zur Lichtwellenlänge wesentlich kleinere Abmessung der einzelnen Schichten des Übergitters ergibt sich für dieses ein effektiver Brechungsindex. Dieser weist gegenüber ZnSSe einen Indexkontrast von etwa 0.6 im für die II-VI Resonatoren relevanten Spektralbereich auf. Somit können aus diesen beiden Schichten DBRs mit einer Reflektivität von über 99 % hergestellt werden [179, 239, 240]. Durch eine Optimierung des Cd-Gehalts sowie der Schichtdicken im Übergitter konnte die mittlere Gitterkonstante des Übergitters der Gitterkonstanten von GaAs angepasst werden, was ein pseudomorphes Wachstum der

Kavität ermöglicht [179].

Auf diesen unteren Spiegel folgt die Kavitätsabstandsschicht mit der optischen Dicke λ_C aus dem Hochindexmaterial ZnSSe. Da beim Wachstum nicht immer garantiert werden kann, dass die Lumineszenz des aktiven Materials bei der gewünschten Temperatur exakt mit der Lage der Kavitätsresonanz übereinstimmt, wird die Kavitätsabstandsschicht im Gegensatz zu den restlichen Schichten ohne Rotation der Probe gewachsen. Dadurch variiert die Lage der Kavitätsmode im Gegensatz zur Emission des aktiven Materials leicht über die Probe und es kann bei der anschließenden Charakterisierung der für die jeweilige Untersuchung ideale Überlapp gewählt werden. Im Feldmaximum der Kavitätsschicht, was bei den verwendeten λ -Kavitäten der Mitte der Kavitätsabstandsschicht entspricht, befindet sich die aktive Schicht. Diese besteht entweder aus drei Quantenfilmen oder einer Quantenpunktschicht. Abschließend folgt der obere Spiegel, welcher gegenüber dem unteren Spiegel eine geringere Anzahl an Spiegelpaaren und damit eine geringfügig verminderte Reflektivität besitzt. Diese reduzierte Reflektivität ist notwendig, um das Licht effektiv nach oben auszukoppeln. Der schematische Aufbau eines solchen ZnSe-basierten monolithischen Vertikalresonators ist im linken Teilbild von Abbildung 4.1 dargestellt, vergleichend dazu ist im rechten Teilbild eine REM-Aufnahme eines ZnSe-basierten zirkularen Säulenresonators mit einem Durchmesser von etwa $1\text{ }\mu\text{m}$ zu sehen.

Trotz des pseudomorphen Wachstums bilden sich ab einer Schichtdicke von etwa 20 Spiegelpaaren bzw. ca. $2\text{ }\mu\text{m}$ zunehmend Stapelfehler in den Strukturen aus, welche bei manchen Proben zu einer Degradation der Oberfläche führen. Jedoch sind selbst bei Proben mit einer großen Dichte an Stapelfehlern stets Bereiche von mehreren $10\text{ }\mu\text{m}$ mal $10\text{ }\mu\text{m}$ frei von sichtbaren Defekten. Diese Bereiche sind für die Prozessierung von Säulenresonatoren mit typischen Durchmessern zwischen 500 nm und $4\text{ }\mu\text{m}$ ausreichend, so dass die stellenweise Degradation der Probenoberfläche die optische Charakterisierung nicht beeinträchtigt.

Anpassung der Spiegel auf den blauen Spektralbereich

Die Verwendung von binären ZnSe-Quantenfilmen anstatt der bisher beschriebenen quaternären ZnCdSSe-Quantenfilme ermöglicht eine deutliche Reduktion der homogenen Linienbreite der Quantenfilmemission. Die Emission dieser ZnSe-Quantenfilme ist bei tiefen Temperaturen bei etwa 2.82 eV zentriert. Aufgrund der ab einer Photonenenergie von etwa 2.74 eV einsetzenden Absorption in ZnSSe sind die bisher beschriebenen Spiegel für ZnSe-Quantenfilme jedoch nicht verwendbar.

Um die Reflektivität der Bragg-Spiegel in den blauen Spektralbereich der ZnSe-Quantenfilme zu verschieben, wurde das absorbierende ternäre ZnSSe durch quaternäres ZnMgSSe mit einem Magnesiumanteil von 28 % ersetzt. Der zusätzliche Einbau von Magnesium vergrößert die Bandlücke der Hochindexschicht, was zu einer Vermeidung von Absorptionsverlusten führt. Die Niederindexschicht besteht, wie für den Vertikalresonator im grünen Spektralbereich, aus einem kurzperiodischen Übergitter aus MgS/ZnCdSe . Die im Vergleich zu den bisherigen Strukturen für den grünen Spektralbereich vergrößerte Bandlücke für die Hochindexschicht hat jedoch einen geringeren Brechungsindex zur Folge. Dadurch verringert sich für die Resonatorstruktur für den blauen Spektralbereich auch der Brechungsindexkontrast zur Niederindexschicht auf etwa 0.43 [241]. Nach Formel 2.15 wirkt sich dieser verminderte Indexkontrast nachteilig auf die Reflektivität der DBR-Spiegel aus. Entsprechend ist bei gleicher Anzahl an Spiegelpaaren die maximale Reflektivität der DBR-Spiegel im Vergleich zu den Kavitäten für den grünen Spektralbereich geringer. Soll eine ähnliche Reflektivität

der Spiegel erreicht werden, muss die Anzahl an Spiegelpaaren entsprechend erhöht werden. Die in dieser Arbeit verwendeten Kavitäten für den blauen Spektralbereich bestehen aus 18.5 unteren Bragg-Spiegel-Paaren, einer Kavitätsabstandsschicht der optischen Dicke λ_C aus dem Hochindexmaterial ZnMgSSe sowie 15 oberen Bragg-Spiegeln in umgekehrter Reihenfolge der Hoch- und Niederindexschichten. Damit ähneln sie dem Aufbau der bereits beschriebenen Proben für den grünen Spektralbereich. Die gegenüber dem grünen Spektralbereich veränderte Wellenlänge erfordert allerdings eine Anpassung der Schichtdicken der Bragg-Spiegel auf 46 nm für die Hochindexschicht und 41 nm für die Niederindexschicht. Im Zentrum der Kavitätsabstandsschicht wurden als optisch aktives Material drei ZnSe-Quantenfilme eingebettet.

II-VI-basierte Quantenfilme und Quantenpunktschichten

In die Vertikalresonatoren wurden als optisch aktives Material sowohl Quantenfilme als auch Schichten mit Quantenpunkten eingebettet. Für eine möglichst effektive Auskoppelung der Photonen aus den Resonatoren muss der Überlapp zwischen Resonatormode und Emitter maximal sein und die optisch aktive Schicht im Feldmaximum der Kavität liegen. Im Fall der verwendeten λ -Kavitäten ist dies das Zentrum der Kavitätsabstandsschicht. Die Quantenfilmproben für den grünen Spektralbereich bestehen aus drei $\text{Zn}_{0.67}\text{Cd}_{0.33}\text{S}_{0.06}\text{Se}_{0.94}$ -Schichten mit einer Dicke von jeweils 3.8 nm, welche mittig in die ZnSSe-Kavitätsabstandsschicht eingebettet wurden [239]. Durch eine Variation des Cadmiumanteils lässt sich dabei die Lage des Verstärkungsmaximums über einen weiten spektralen Bereich einstellen und dadurch exakt auf die Lage der Kavitätsresonanz bei der für das jeweilige Experiment gewünschten Temperatur abstimmen [242]. Ein möglichst großer spektraler Überlapp zwischen Verstärkungsmaximum und Kavitätsresonanz ist für eine effiziente Auskoppelung der vom Quantenfilm emittierten Photonen aus der Mikrokavität und damit insbesondere für das Erreichen einer geringen Laserschwelle bei den VCSEL-Strukturen wichtig. Durch die Verwendung von Schwefel für die optisch aktive Schicht werden Verspannungen in den Quantenfilmen verringert, was zu einer Verbesserung der strukturellen Qualität und Vermeidung von Stapelfehlern führt.

Für die Quantenfilmproben im blauen Spektralbereich wurden drei ZnSe-Quantenfilme verwendet, welche ebenfalls zentral in eine λ -Kavität eingebettet wurden. Die Quantenfilme besitzen eine Dicke von 8 nm und sind durch 7 nm dicke ZnMgSSe-Zwischenschichten voneinander getrennt [243].

Als Alternative zu den Quantenfilmproben stehen Mikrokavitäten mit einer optisch aktiven Schicht aus selbstorganisiert gewachsenen CdSe/ZnSe-Quantenpunkten zur Verfügung. Die Quantenpunkte wurden ebenfalls unter Leitung von *Dr. C. Kruse* mittels MBE hergestellt. Für das Quantenpunktwachstum wurde ein spezielles Wachstumsverfahren der MBE verwendet, die Migration-Enhanced Epitaxy (MEE [130]). Dieses Verfahren basiert auf dem abwechselnden Anbieten beider Komponenten einer binären Verbindung. Durch kurze Wachstumspausen zwischen den Zyklen können sich die abgeschiedenen Atome durch Diffusion auf der Oberfläche bewegen und auf diese Weise Quantenpunkte bilden [244, 245]. So wird zur Bildung von Quantenpunkten eine Schichtfolge von 1.4 nm ZnSe gefolgt von 1 nm CdSe und erneut 1.4 nm ZnSe abgeschieden. Die abschließende ZnSe-Schicht ist dabei für die Bildung von Quantenpunkten durch eine segregationsverstärkte CdSe-Reorganisation von fundamentaler Bedeutung [245]. Die so hergestellten Quantenpunkte sind typischerweise

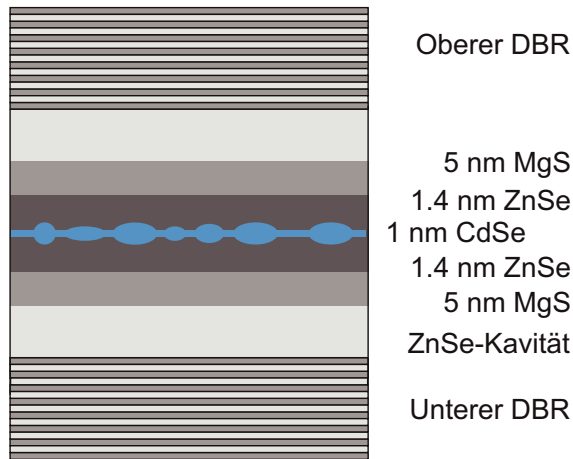


Abbildung 4.2: Schematische, nicht maßstabsgetreue, Skizze eines Ausschnitts der Quantenpunkt-basierten Mikrokanalität. Für eine höhere Temperaturstabilität wurde die Quantenpunktschicht mit MgS-Barrieren umgeben. Die Einbettung erfolgte in eine ZnSe-Kavität.

linsenförmig und besitzen eine Höhe von 1.2 nm bis 2 nm und eine laterale Ausdehnung von 5 nm bis 10 nm. Die Dichte liegt im Bereich von 10^{10} bis 10^{11} cm^{-2} [65]. Für eine höhere Temperaturstabilität der exzitonischen Emission werden die so hergestellten Quantenpunkte in 5 nm dicke MgS-Barrieren eingebettet. Aufgrund der größeren Bandlücke von MgS gegenüber CdSe und ZnSe schließen diese Barrieren die Ladungsträger im Bereich der Quantenpunkte ein. Die gesamte Schichtabfolge wird mittig in die Kavitätschicht eingebettet. Eine Prinzipskizze des Mikroresonators mit einer aktiven Schicht aus Quantenpunkten ist in Abbildung 4.2 im Bereich um die Kavitätschicht zu sehen.

Die selbstorganisiert gewachsenen Quantenpunkte besitzen hinsichtlich ihrer Größe und Komposition eine große Fluktuation, was zu einer inhomogen verbreiterten Lumineszenzbande des Quantenpunkt-Ensembles führt. Da nur wenige Quantenpunkte spektral in die niederenergetische Flanke des Quantenpunktensembles emittieren, können durch Abstimmung der longitudinalen Kavitätsresonanz auf diese niederenergetische Flanke bei tiefen Temperaturen Untersuchungen an einzelnen Quantenpunkten durchgeführt werden. Für den Fall von Quantenpunkt-basierten VCSEL-Strukturen ist hingegen ein möglichst großer spektraler Überlapp zwischen Lumineszenzbande und Kavitätsresonanz wünschenswert, da durch eine vermehrte Emission in die Kavitätsmode die Laserschwelle gesenkt wird.

4.1.2 Vertikalresonatoren auf Basis von GaN

Die monolithischen Nitrid-basierten Vertikalresonatoren wurde von *Heiko Dartsch* mittels MOVPE hergestellt. Der schematische Aufbau einer solchen VCSEL-Struktur ist in Abbildung 4.3 gezeigt. Dazu wird auf der c-Fläche eines Saphir-Substrats zuerst eine 1.8 μm dicke Pufferschicht aus GaN abgeschieden. Auf diese Pufferschicht folgt die eigentliche Struktur, bestehend aus 40 unteren Spiegelpaaren, der Kavitätsabstandsschicht der optischen Dicke λ_C mit der aktiven Schicht sowie dem oberen DBR mit 20 Spiegelpaaren. Die Hochindexschicht der Spiegel besteht aus 43 nm GaN mit einem Brechungsindex von 2.5. Als Material mit dem niedrigsten Brechungsindex in der Gruppe der 3-Nitride wäre AlN mit $n = 2.1$ für die Niederindexschicht ideal. Aufgrund der Gitterfehlpassung von etwa 2.5 % kann AlN allerdings nicht in dickeren Schichten auf GaN hergestellt werden. Eine Alternative bietet entweder der Ansatz eines kurzperiodischen Übergitters mit AlN und GaInN [246] oder die Verwendung von AlInN, welches bei einem Indiumanteil von 18 % gitterangepasst zu GaN gewachsen werden kann. Die in dieser Arbeit untersuchten Strukturen wurden unter Verwendung von

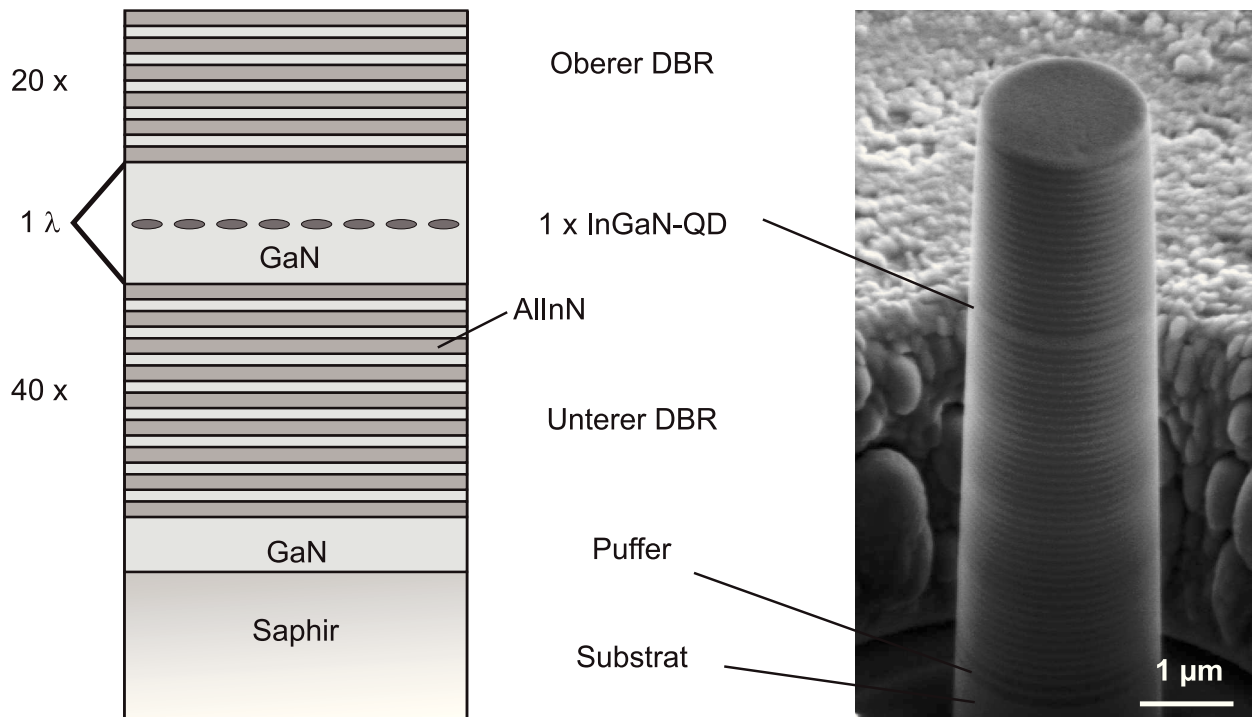


Abbildung 4.3: Schematischer, nicht maßstabsgetreuer Aufbau der GaN-VCSEL-Struktur (links) und REM-Bild eines mittels FIB prozessierten Säulenresonators (rechts). Die Schichtstruktur der beiden DBRs mit GaN (hell) als Hochindexschicht und der Niederindexschicht aus AlInN (dunkel) sowie die GaN- λ -Kavität sind deutlich erkennbar. Die Probe um 52° gegenüber der Säulenachse verkippt.

67 nm dicken gitterangepassten AlInN-Schichten hergestellt. Da die Wachstumstemperatur von AlInN mit 820°C wesentlich geringer ist als die von GaN mit 1050°C , muss beim Übergang zwischen den Schichten in einer kurzen Wachstumspause von 120 Sekunden die Substrattemperatur angepasst werden [247]. Im Zentrum der 180 nm dicken GaN-Kavität befindet sich eine optisch aktive Schicht aus InGaN-Quantenpunkten.

InGaN/GaN-Quantenpunkte

Die Herstellung von InGaN-Quantenpunktschichten wurde am *Institut für Festkörperphysik* der Universität Bremen von *Christian Tessarek* mittels eines zweistufigen MOVPE Wachstums durchgeführt [139]. Dazu wird auf die untere Hälfte der GaN-Kavitätsabstandsschicht bei 650°C eine 1.5 nm dicke InGaN-Schicht mit 82 % Indium abgeschieden. Überwachsen wird diese Quantenpunkt-Nukleationsschicht bei 700°C von einer 7 nm dicken InGaN-Formationsschicht mit 8 % Indiumanteil. Das Wachstums beider Schichten erfolgt unter Stickstoffatmosphäre. Die Mischungslücke in InGaN führt zu einer binodalen bzw. spinodalen Trennung der InGaN-Schicht in lokale Bereiche mit hohem und niedrigem In-Anteil [248]. Dabei werden die Bereiche mit hohem Indiumanteil vollständig in eine Schicht mit niedrigem Indiumanteil eingebettet. Da die Bereiche mit hohem Indiumanteil eine kleinere Bandlücke besitzen als die sie umgebende Schicht, führt diese Entmischung zur Entstehung einer InGaN-Quantenpunktschicht [249]. Die Flächendichten der Quantenpunkte liegen in diesen Schichten typischerweise bei $5 \cdot 10^8$ bis $1 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$. Da das Indium ab einer Temperatur von 820°C

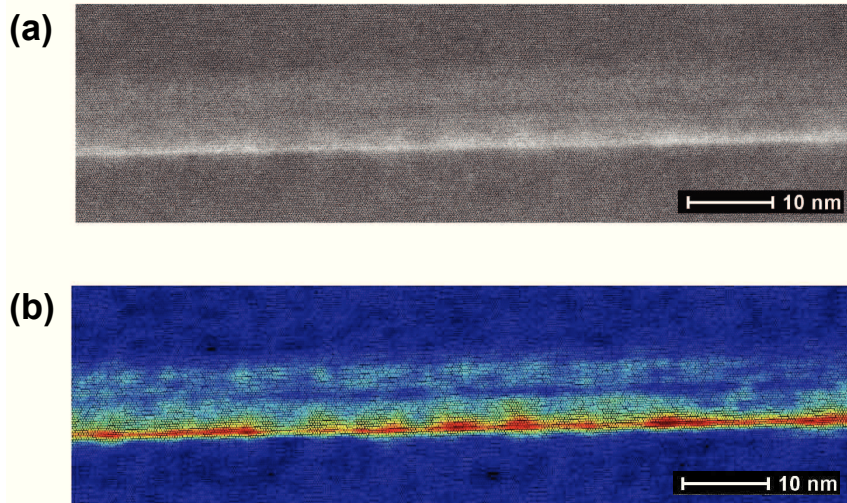


Abbildung 4.4: (a) Hochauflösende STEM Z-Kontrast-Aufnahme einer bei 750 °C mit GaN bedeckten phasenseparierten InGaN-Struktur. (b) Ausgewertete Indium-Konzentration der Aufnahme aus (a). Rot: 18 % Indium, Blau: indiumfrei. Entnommen aus [O2].

desorbiert, kann die folgende GaN-Schicht nicht mit höheren Temperaturen aufgebracht werden. Wachstumstemperaturen von unter 1050 °C führen in GaN jedoch zu einer Verringerung der kristallinen Qualität und damit zu einer hohen Defektdichte, welche zu nicht-strahlenden Rekombinationsprozessen und somit zu einer Verringerung der Lichtemission führt. Eine hohe Defektdichte ist insbesondere dann problematisch, wenn noch ein oberer DBR aufgewachsen werden soll. Um Einbußen bei der kristallinen Qualität zu vermeiden und gleichzeitig die Quantenpunkte nicht zu beschädigen, wurde daher direkt auf die Quantenpunktschicht bei 820 °C eine 24 nm dicke GaN Schicht gewachsen. Während des Wachstums der folgenden 6 nm dicken Schicht wird die Temperatur von 820 °C auf 1050 °C erhöht, mit welcher dann die obere Hälfte der Kavitätsabstandsschicht hergestellt werden kann.

Eine hochauflösende HAADF-STEM-Aufnahme (*HAADF-STEM: high-angle annular dark-field scanning transmission electron microscopy*) einer bei 750 °C mit GaN bedeckten InGaN-Quantenpunktschicht ist in Abbildung 4.4 (a) gezeigt. Bei diesem Betriebsmodus des TEM wird der Elektronenstrahl stark fokussiert und rasterförmig über die Probe gefahren. Als Messsignal werden mit einem Ringdetektor diejenigen Elektronen detektiert, welche unter einem Winkel zwischen 33 mrad und 200 mrad gestreut werden [250]. Da dieses Streusignal stark von der Kernladungszahl abhängt, lässt sich bei bekannter Probendicke durch einen Vergleich mit Simulationen die chemische Zusammensetzung der Probe ermitteln. Durch eine Auswertung der Indium-Konzentration ergibt sich auf diese Weise Abbildung 4.4 (b), bei welcher die Farbe Rot für eine Indium-Konzentration von 18 % steht, die Farbe Blau für indiumfreie Bereiche.

4.2 Mikrostrukturierung mittels fokussiertem Ionenstrahl

Der Großteil der in dieser Arbeit präsentierten Untersuchungen wurde an vom Autor selbst strukturierten Mikrokavitäten mit Abmessungen von teilweise unter einem Mikrometer durchgeführt. Industriell werden solche Strukturen meist durch photolithographische Verfahren hergestellt, bei welchen zuerst eine Maske auf die zu strukturierende Probe aufgebracht wird. Die Struktur dieser Maske wird in einem anschließenden Ätzschritt entweder nasschemisch oder durch reaktives Trockenätzen in die Probe übertragen [142, 251, 252]. Abschließend muss die Maske wieder entfernt werden. Diese parallele Verfahren haben den Vorteil, dass schnell große Probenbereiche strukturiert werden können und dadurch eine hohe Durchsatzrate gewährleistet wird. Den parallelen Verfahren stehen die seriellen Verfahren gegenüber. Dabei wird meist ein einzelner Strahl über die Probe gerastert und schreibt die gewünschte Struktur entweder in eine Maske oder direkt in die Probenoberfläche. Je nach verwendeter Wellenlänge können dabei höhere Auflösungen als bei den parallelen Verfahren erreicht werden. Die Durchsatzraten sind jedoch wesentlich geringer, so dass serielle Verfahren im industriellen Einsatz kaum Verwendung finden. Für die Untersuchung von Prototypen in der Forschung bietet die serielle Strukturierung mittels fokussierter Ionenstrahlen jedoch eine interessante und maskenfreie Alternative zur photolithographischen Strukturierung [253].

Am *Institut für Festkörperphysik* der Universität Bremen steht für solche Strukturierungen ein kommerziell erhältliches FEI Nova 200 Nanolab System zur Verfügung. Neben dem Ionenstrahl besitzt dieses System zusätzlich eine Elektronenquelle für rasterelektronenmikroskopische (REM) Untersuchungen, so dass der Erfolg der Strukturierung direkt überprüft werden kann. Die Auflösung des Elektronenmikroskops beträgt in der größten Vergrößerung etwa 1 nm. Zur Strukturierung werden, wegen ihres niedrigen Schmelzpunktes, Gallium-Ionen gewählt. Diese werden mit einer Spannung von 30 keV beschleunigt und durch elektrischen Linsen auf die Probenoberfläche fokussiert. Der Durchmesser des Ionenstrahls hängt wegen der elektrischen Abstoßung der Ionen untereinander stark von der gewählten Stromstärke ab und bewegt sich im Bereich von 100 nm bei 5 nA bis 10 nm bei 1 pA. Wird dieser Ionenstrahl über die Probe geführt, so wird entlang des Pfades Material abgetragen und eine Struktur bildet sich heraus. Dabei können die lateralen Abmessungen direkt vorgegeben werden, die Tiefe der Struktur wird jedoch aus einem experimentell ermittelten Materialabtrag berechnet und ist daher nur eine Abschätzung. Wie in Abbildung 4.5 (a) zu sehen, kann sich das abgetragene Material auch wieder auf der Probe ablagern, was unter Umständen zu einer Verunreinigung der Strukturen führen kann.

Zur Strukturierung von Mikrokavitäten wurden in dieser Arbeit drei prinzipiell verschiedene Verfahren angewandt. Für Säulenresonatoren erfolgt die Strahlführung durch eine Programmroutine, welche auf Polarkoordinaten basiert. Dabei wird der Strahl entlang einer Kreislinie um die Säule geführt, wobei der Radius kontinuierlich verringert wird. Dieser Durchlauf wird so lange wiederholt, bis der gewünschte Materialabtrag erreicht ist. Eine Strukturierung mit abnehmendem Radius stellt dabei sicher, dass im letzten Schritt die Seitenfläche des Säulenresonators stets von eventuellen Materialablagerungen befreit wird. Dieses Verfahren liefert scharfe Seitenkanten, ist jedoch auf radialsymmetrische Strukturen beschränkt. Eine REM-Aufnahme eines auf diese Weise hergestellten Säulenresonators ist in Abbildung 4.5 (a) zu sehen. Die zur Herstellung der Strukturen genutzten Prozessierungsschritte sind von *Henning Lohmeyer* am IFP in Bremen entwickelt und in seiner Dissertation veröffentlicht [76] worden.

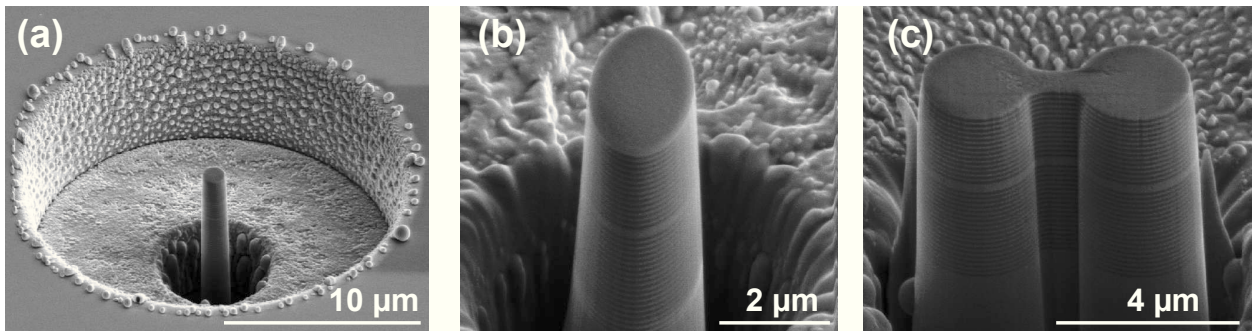


Abbildung 4.5: REM-Aufnahmen von MC-Strukturen, die mittels FIB strukturiert wurden. Bei allen Aufnahmen ist die Probe um 52° gegenüber der REM-Achse verkippt. (a) Säulenresonator mit einem Durchmesser von $1.5\mu\text{m}$. (b) Elliptischer Säulenresonator mit Hauptachsen von $2\mu\text{m}$ und $3.88\mu\text{m}$, bei welchem die Strahlführung durch ein streamfile vorgegeben wurde. (c) Photonisches Molekül, Steuerung des Strahls durch ein bitmap-file.

Eine zweite Möglichkeit zur Strahlführung bei der Prozessierung ist die Verwendung von sogenannten streamfiles, in welchen jeder Punkt, den der Ionenstrahl der Reihe nach anfahren soll, einzeln definiert wird. Aufgrund der Vielzahl von 4096×3536 möglichen anzufahrenden Positionen kann dieses Verfahren jedoch nur bei Objekten sinnvoll angewandt werden, für welche sich die anzufahrenden Positionen mathematisch einfach beschreiben und dadurch mit Mathematik-Programmen berechnen lassen. Ein Beispiel hierfür stellt der Säulenresonator mit elliptischem Querschnitt in Abbildung 4.5 (b) dar. Bei den beiden bisherigen Verfahren fährt der Ionenstrahl nur über Probenbereiche, an welchen auch Material abgetragen werden soll.

Bei der dritten Möglichkeit, der Strukturierung mittels bitmap-files, weicht die Strahlführung von den ersten beiden Methoden ab. Hier wird der Ionenstrahl vergleichbar mit dem Elektronenstrahl eines REM zeilenweise über die Probe gerastert und für nicht zu strukturierende Bereiche geblockt. Die zu strukturierenden Bereiche werden dabei über die RGB-Farbwerte eines 24bit bitmap-files definiert. Hierbei lässt sich mit dem Grünwert der Ionenstrahl ein- bzw. ausschalten, wohingegen der Blauwert die Verweildauer des Ionenstrahls an der entsprechenden Stelle angibt [254]. Mit diesem Verfahren lässt sich jede beliebige Geometrie in einem Zeichenprogramm erstellen und auf die Probe übertragen. Beispielhaft ist in Abbildung 4.5 (c) eine REM-Aufnahme eines mit dieser Methode strukturierten photonischen Moleküls dargestellt. Allerdings werden die Kanten der Strukturen nicht so scharf wie bei den ersten beiden Verfahren, was auf die nicht instantane Blockierung des Ionenstrahls zurückzuführen ist. Die Qualitätseinbußen der Strukturen bewegen sich jedoch für die meisten Anwendungen in einem akzeptablen Rahmen, so dass die Vorzüge der einfacheren Maskenerstellung für komplexere Strukturen überwiegen.

Bei allen Methoden wird zuerst mit einem Ionenstrom von einigen Nanoampere in einem Ring mit der Breite von $25\mu\text{m}$ um die Struktur das gesamte aktive Material entfernt (Abbildung 4.5 (a)). Anschließend wird der Ionenstrom zur Vermeidung von Schädigungen der Strukturen in drei Schritten sukzessive reduziert, bis im letzten Schritt die Oberfläche der Struktur mit einem Strom von wenigen Pikoampere poliert wird. Durch ein solches Prozessierungsverfahren lässt sich die Dicke der amorphen Randschicht der Mikrostrukturen auf etwa 2nm beschränken [191]. Dabei müssen für jeden Strom der Fokus sowie mögliche astigmatische Fehler der Ionenoptik korrigiert werden.

4.3 Mikro-Photolumineszenz

Da die Mikrostrukturen Abmessungen im Bereich weniger Mikrometer besitzen, ist zu deren spektroskopischer Charakterisierung eine Methode mit einer vergleichbaren räumlichen Auflösung notwendig. Die Mikro-Photolumineszenz-Spektroskopie (μ PL), bei welcher das Laserlicht durch ein Mikroskopobjektiv auf die Probe fokussiert wird und so einzelne Mikrostrukturen selektiv angeregt werden können, stellt ein solches Verfahren dar. Eine schematische Skizze des verwendeten Versuchsaufbaus ist in Abbildung 4.6 gezeigt.

Die zu untersuchende Probe ist in einem Durchflusskryostaten der Firma *Oxford Instruments* befestigt, welcher eine präzise Einstellung der Temperatur im Bereich von 4 K bis 300 K erlaubt. Um die einzelnen Mikrostrukturen auf der Probe zu adressieren, ist der gesamte Kryostat über elektrische Lineartische *PI M505* in allen Raumrichtungen beweglich gelagert. Da die Genauigkeit der Lineartische im Bereich von wenigen Mikrometern liegt und damit zu einer exakten Positionierung des Laserstrahls auf den Mikrostrukturen nicht ausreichend ist, wurde zusätzlich das Mikroskopobjektiv auf einen selbst-stabilisierenden Piezowürfel (*Tritor100SG*, *Piezosystem Jena*) montiert. Mit einem Verfahrweg von $75\ \mu\text{m}$ und einer Genauigkeit von etwa $10\ \text{nm}$ in allen Raumrichtungen lassen sich die Mikrostrukturen damit exakt anfahren. Als Mikroskopobjektiv steht für den sichtbaren Bereich ein konventionelles Olympus-Objektiv mit einer 50-fachen Vergrößerung (Numerische Apertur, $\text{NA}=0.5$, Arbeitsabstand, $\text{AA}=10.5\ \text{mm}$) zur Verfügung. Für den ultravioletten Spektralbereich wird ein Spiegelobjektiv der Firma *Ealing* mit 36-facher Vergrößerung verwendet ($\text{NA}=0.5$, $\text{AA}=8\ \text{mm}$). Sowohl die Anregung wie auch die Detektion erfolgen über dasselbe Mikroskopobjektiv. Das Photolumineszenzlicht der Proben wird entweder zur Überprüfung der Position des Laserspots auf der Probe auf eine Kamera abgebildet (*Watec 120N+*) oder zur Aufnahme von Spektren über einen Monochromator auf eine CCD-Kamera (*Princeton Instruments Spec10*, *UV enhanced*) geleitet. Zur Verringerung des thermischen Rauschens wird der CCD-Chip der Kamera mit flüssigem Stickstoff auf eine Temperatur von $T = -120\ ^\circ\text{C}$ gekühlt. Das Gesamtsystem erreicht dabei eine spektrale Auflösung von etwa $160\ \mu\text{eV}$. In den Nachweisstrahlengang können bei Bedarf noch optische Elemente wie z. B. ein Kantenfilter zum Schutz der Spektrometerkamera vor Rückreflexen des Anregungslasers, eine Blende oder ein Polarisator und eine $\lambda/2$ -Verzögerungsplatte für polarisationsaufgelöste Messungen eingebaut werden.

Wählt man zwei Linsen 1 und 2 mit den Brennweiten f_1 und f_2 so aus, dass die Summe $2 \cdot f_1 + 2 \cdot f_2$ gleich der Entfernung vom Mikroskopobjektiv zum Eintrittsspalt des Spektrometers ist, dann lässt sich die spektrale Verteilung des Wellenvektors ermitteln. Dazu wird Linse 1 im Abstand f_1 nach dem Mikroskopobjektiv und Linse 2 im Abstand f_2 vor dem Eintrittsspalt des Spektrometers positioniert. Auf diese Weise können direkt Dispersionsrelationen bestimmen werden.

Als Anregungsquellen stehen verschiedene Lasersysteme sowie eine Weißlichtquelle (*Ocean Optics HL2000*) für Reflexionsmessungen zur Verfügung. Die PL-Charakterisierung der Nitrid-Proben erfolgte sowohl mit einem Dauerstrich (cw) HeCd-Laser (*Kimmon IK3552R-G*) mit einer maximale Ausgangsleistung von $60\ \text{mW}$ bei einer Wellenlänge von $325\ \text{nm}$ wie auch mit einem Diodenlaser der Firma *Coherent* mit einer Wellenlänge von $406\ \text{nm}$ und maximal $100\ \text{mW}$ optischer Ausgangsleistung. Zur cw-Anregung der II-VI-Strukturen findet ein bei $457.9\ \text{nm}$ emittierender Ar^+ -Ionen-Laser (*Spectra Physics Modell 2020*) Verwendung.

Als Alternative zu den cw-Lasern steht ein Titan:Sapphir-Oszillator der Firma *K&M Labs*

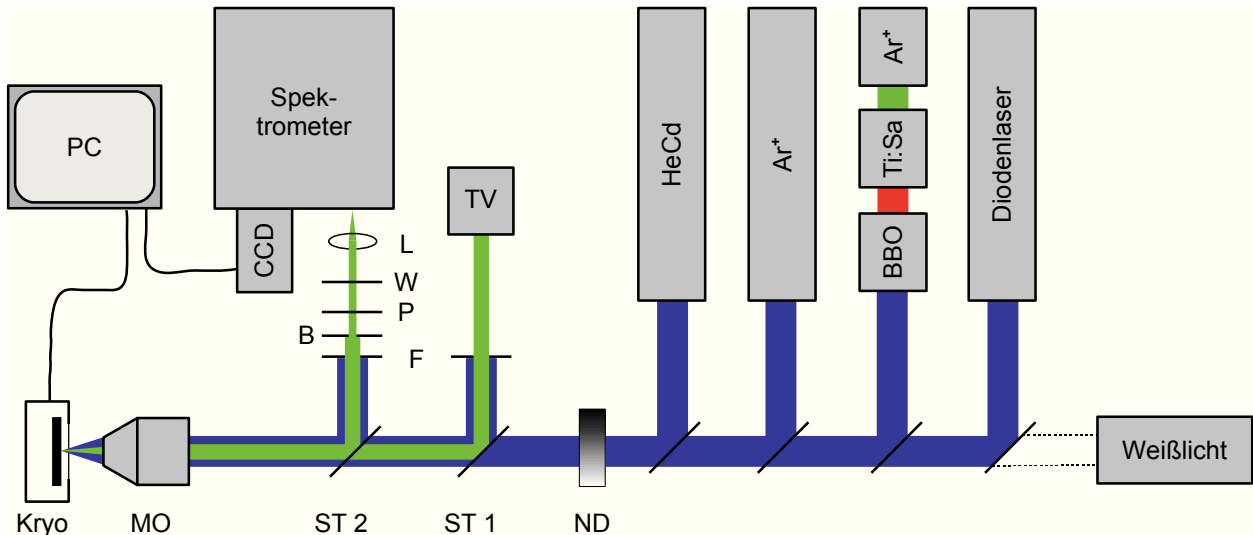


Abbildung 4.6: Schematische Skizze des μ PL-Aufbaus. Dabei bezeichnen ND: Neutralsdichte Filterrad, ST: Strahlteiler, MO: Mikroskopobjektiv, F: Kantenfilter, B: Blende, P: Polarisator, W: $\lambda/2$ -Verzögerungsplatte und L: Linse.

(Modell Griffin) zur Verfügung, welcher durch einen Ar^+ -Ionen-Gaslaser (*Spectra Physics Modell 2085*) gepumpt wird. Eine anschließende Frequenzverdopplung durch einen BBO-Kristall liefert Pulse mit einer Länge von etwa 100 fs und einer Pulsenergie von maximal 11 pJ, die Wiederholrate beträgt etwa 94 MHz. Die Wellenlänge ist über einen Bereich von 400 nm bis 425 nm frei einstellbar. Zwischen den Anregungslasern und dem Kryostaten befindet sich ein Neutralsdichte-Filterrad, welches eine einstellbare Abschwächung der Anregungsleistung um bis zu zwei Größenordnungen ermöglicht. Zur Entkopplung von Gebäudeschwingungen ist der gesamte Versuchsaufbau auf einem schwingungsgedämpften optischen Tisch montiert.

Für Untersuchungen von Laserstrukturen hinsichtlich des Einsetzens von stimulierter Emission steht noch ein zweiter μ PL-Aufbau zur Verfügung. Dabei wurde ein Mikroskopobjektiv der Firma Zeiss mit 40-facher Vergrößerung ($\text{NA}=0.6$, $\text{AA}=2.9$ mm) sowohl zur Fokussierung des Laserstrahls wie auch zum Einsammeln des von der Probe emittierten Lichts verwendet. Als Anregungsquelle diente ein Titan-Saphir Lasersystem, bestehend aus einem bei 9.5 W betriebenen Pumplaser (*SpectraPhysics Millennia Pro*) und einem Ti:Sa-Oszillator (*SpectraPhysics Tsunami*). Die Pulse werden anschließend auf 400 nm frequenzverdoppelt und besitzen eine maximale Pulsenergie von 488 pJ. Die Wiederholrate des System liegt bei etwa 81 MHz, die Pulslänge bei 120 fs. Eine genauere Beschreibung dieses Aufbaus findet sich in [255].

4.3.1 Fernfeld-Messungen

Durch eine geringfügige Modifikation des μ PL-Aufbaus lässt sich aus den Mikrostrukturen nicht nur eine spektrale Information erhalten, sondern auch eine Aussage über die Intensitätsverteilung des optischen Feldes innerhalb der Strukturen treffen. Hierzu wird die Einkoppelinse vor dem Spektrometer (Bezeichnung L in Abbildung 4.6) so positioniert, dass anstatt der Fourierebene die Bildebene auf den Eintrittsspalt abgebildet wird [76, 257]. Der entsprechende Strahlengang für eine PL-Messung (grau unterlegt, Abbildung der Fourierebene) sowie für die Aufnahme der Fernfelddbilder (gepunktet, Abbildung der Bildebene) ist in

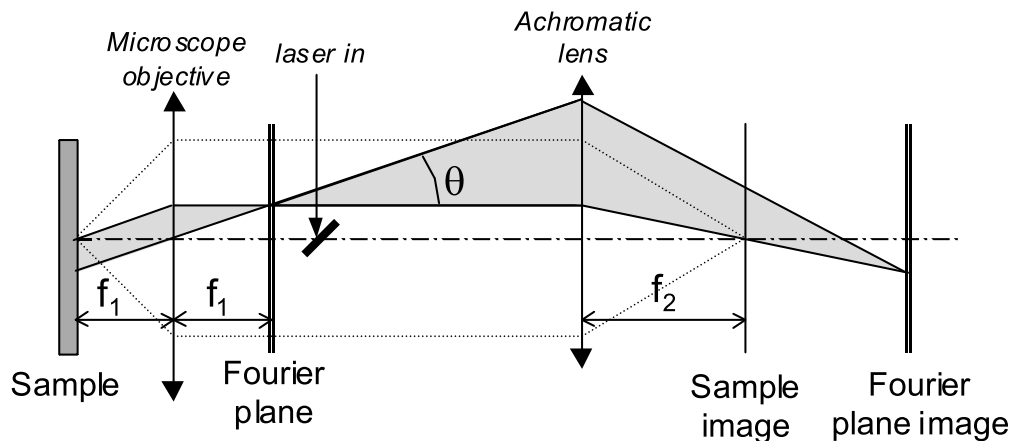


Abbildung 4.7: Skizze der unterschiedlichen Strahlengänge zur Detektion des PL-Spektrums (grau unterlegt, Abbildung der Fourierebene) bzw. des Fernfeldes (gepunktet, Abbildung der Bildebene). Aus [256]

Abbildung 4.7 skizziert. Dadurch entsteht eine zweidimensionale Intensitätsverteilung auf dem CCD-Chip der Spektrometerkamera, die in vertikaler Richtung die räumliche Abstrahlcharakteristik aus der Struktur parallel zum Eintrittsspalt enthält. Aus dieser Intensitätsverteilung im Fernfeld lässt sich gemäß der Fraunhofer-Beugung direkt die transversale Feldverteilung der optischen Moden im Resonator ableiten [258]. Mit diesem Verfahren ist folglich die transversale interne Modenstruktur auch für Strukturen mit Abmessungen im Bereich von wenigen Mikrometern experimentell zugänglich. Der erfassbare Fernfeldwinkel ist von der numerischen Apertur des verwendeten Mikroskopobjektives abhängig und auf 60° begrenzt. Für die höheren Moden mit einer großen transversalen Komponente führt dies zu einer unvollständigen Detektion der Intensität im Fernfeld.

Um ein vollständiges zweidimensionales Bild der Modenverteilung zu erhalten, benötigt man noch die Intensitätsverteilung des Fernfeldes senkrecht zum Spalt. Diese lässt sich durch ein schrittweises Verfahren der Einkoppellinse senkrecht zum Spalt erhalten. Dadurch wird jeweils ein anderer Ausschnitt der Fourierebene auf den Eintrittsspalt abgebildet. Ein Zusammenfügen der verschiedenen Einzelmessungen für eine feste Wellenlänge ergibt das gesamte räumliche Abstrahlbild für die entsprechende spektrale Position. Mit diesem Verfahren lässt sich jeder Mode im Spektrum eine Fernfeldverteilung zuordnen, aus welcher direkt auf die Verteilung des optischen Feldes innerhalb der Mikrostruktur geschlossen werden kann.

4.4 Simulationen

Um ein besseres Verständnis der physikalischen Vorgänge zu erhalten, wurden die Messdaten in dieser Arbeit teilweise durch Simulationen ergänzt. Zum Einsatz kamen dabei die beiden frei verfügbaren Programme CAMFR [74] und MPB [259].

Das Programm *Cavity Modelling Framework* (CAMFR) wurde von *Peter Bienstmann* während dessen Promotion in der *Photonics group* am *Departement of Information Technology (INTEC)* der *Ghent University* entwickelt [75]. Die Idee von CAMFR ist, die laterale Symmetrie in einer Schichtfolge mit konstantem Brechungsindex auszunutzen. Dafür wird das elektromagnetische Feld in jeder Schicht als Summe der lokalen Eigenmoden dieser Schicht

beschrieben. Im Vergleich zu Simulationswerkzeugen, welche auf einer räumlichen Diskretisierung der Struktur basieren, ergibt sich damit eine deutliche Reduzierung des Rechenaufwands. Damit ermöglicht CAMFR die Berechnung von komplexen Strukturen an einem Standard-PC mit einer überschaubaren Rechenzeit.

In dieser Arbeit wird das Simulationsprogramm CAMFR hauptsächlich zur Berechnung von Reflexionsspektren der planaren Kavitätsstruktur eingesetzt. Neben einem Vergleich mit experimentell erhaltenen Spektren sind die berechneten Reflexionsspektren auch zur Auswahl einer effizienten Anregungswellenlänge der Proben in einem Minimum der Reflexion der Braggspiegel hilfreich.

Zur Berechnung der internen Feldverteilung in den Säulenresonatoren wird das *Photonic Bands* Software-Paket vom *Massachusetts Institute of Technology*, abgekürzt als *MPB*, verwendet. Dieses Simulationsprogramm wurde ursprünglich von *Steven Johnson* in Zusammenarbeit mit der *Ab Initio Physics Gruppe* von *Prof. Joannopoulos* entwickelt, um die Ausbreitung elektromagnetischer Wellen in photonischen Kristallen zu beschreiben. Physikalisch handelt es sich um eine auf den Maxwell-Gleichungen basierende ab-initio Berechnung, welche im Frequenzraum voll vektorisierte, dreidimensionale Methoden verwendet. Es kann jedoch allgemein zur Berechnung von Bandstrukturen und elektromagnetischen Moden von periodischen dielektrischen Strukturen eingesetzt werden. Somit können auch die Moden in einem konventionellen Wellenleiter, wie z. B. einem optischen Glasfaserkabel, bestimmt werden. Hierauf basiert auch der Einsatz des Programms zur Bestimmung der Feldverteilung in Säulenresonatoren, die als ausgedehnte Wellenleiter betrachtet wurden. Aufgrund der Symmetrie entlang der Ausbreitungsrichtung des Wellenleiters lassen sich diese Ergebnisse direkt auf die endlichen Säulenresonatoren übertragen. Da an die Querschnittsfläche des Wellenleiters keine Symmetrieanforderungen gestellt werden, lassen sich auf diese Weise auch Modenverteilungen in Säulenresonatoren mit asymmetrischen Querschnitten berechnen.

5 Photonisches Lasing und starke Kopplung in ZnSe-Quantenfilm-VCSELn

In diesem Kapitel sollen Mikrokavitäten mit eingebetteten binären ZnSe-Quantenfilmen optisch charakterisiert werden. ZnSe-Quantenfilme sind insbesondere wegen der schmalen spektralen Breite ihrer exzitonischen Emission in Verbindung mit der bekannt hohen Oszillatorstärke für das Erreichen der starken Kopplung und des polaritonischen Lasings viel versprechend. Zudem ist die Emission im blauen Spektralbereich bei etwa 440 nm (für $T = 4$ K) für viele technische Anwendungen sehr interessant.

In vorangegangenen Untersuchungen konnte am *Institut für Festkörperphysik* der Universität Bremen bereits erfolgreich die stimulierte Emission von VCSEL-Strukturen mit ZnCdSSe-Quantenfilmen im blau-grünen Spektralbereich sowohl bei tiefen Temperaturen wie auch bei Raumtemperatur gezeigt werden [76, 240, 260]. Das Stoppband dieser Kavitäten lässt sich jedoch aufgrund der Absorption der verwendeten ternären ZnSSe-Hochindexschichten nicht in den blauen Spektralbereich erweitern (siehe Abschnitt 4.1.1), so dass ein deutlich veränderter Wachstumsansatz gewählt werden muss. Bei diesem Ansatz werden die absorbierenden ternären ZnSSe-Hochindexschichten durch quaternäre ZnMgSSe-Schichten ersetzt [241]. Da die Absorption in den ternären Hochindexschichten als das begrenzende Element für den Q-Faktor der bisherigen Kavitäten ausgemacht wurde [76], kann durch dieses neue Design eventuell auch der optische Einschluss in den Proben verbessert werden. Durch eine Abstimmung der Kavitätsresonanz auf die spektrale Lage der ZnSe-Quantenfilme bei $T = 4$ K waren die in diesem Kapitel untersuchten Proben für einen Betrieb bei tiefen Temperaturen optimiert.

Dieses Kapitel beginnt mit einer Charakterisierung der erstmalig in der Arbeitsgruppe von Prof. Hommel hergestellten monolithischen VCSEL-Strukturen mit ZnSe-Quantenfilmen als aktivem Material. Dabei wird die strukturelle Qualität dieser Mikroresonatoren mit Raster- und Transmissionselektronenmikroskopie überprüft, während durch Photolumineszenz- und Reflexionsmessungen die optischen Eigenschaften charakterisiert werden. Anschließend werden anregungsdichteabhängige Messungen vorgestellt und die Proben in Bezug auf ihre stimulierte Emission sowie das Einsetzen von starker Kopplung hin untersucht. Die in diesem Kapitel enthaltenen Simulationen der Reflexionsspektren wurden unter Benutzung des CAMFR-Paketes [74, 75] von Dr. K. Sebold angefertigt.

5.1 Stimulierte Emission in monolithischen ZnSe-Quantenfilm-VCSELn

Wie in Abschnitt 4.1.1 dargestellt, besteht der Aufbau des in diesem Abschnitt diskutierten ersten monolithisch hergestellten ZnSe-Quantenfilm-VCSELs aus quaternären ZnMgSSe-Hochindexschichten mit einem Magnesiumanteil von 28 % und einem Schwefelanteil von 29 %.

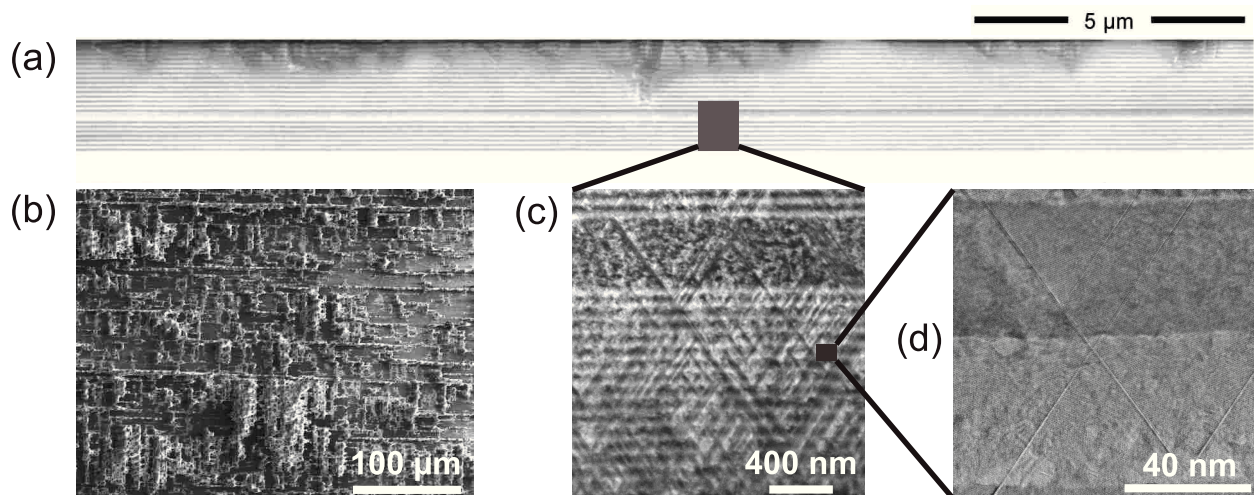


Abbildung 5.1: REM-Aufnahme der Bruchkante (a) und der Probenoberfläche (b) des monolithischen ZnSe-QW-VCSEL mit einem Magnesiumanteil von 28 % und einem Schwefelanteil von 29 % in der Kavitätsabstandsschicht sowie einer Wachstumstemperatur von 280 °C. (c) HRSTEM-Aufnahme des unteren DBRS und der Kavitätsabstandsschicht mit einem vergrößerten Ausschnitt eines DBR-Paars (d). Bild (a) aufgenommen von Dr. T. Aschenbrenner, AG Hommel, Bilder (c) und (d) von G. Qian, AG Rosenauer.

Diese Zusammensetzung wurde auch für die Kavitätsabstandsschicht verwendet. Die Substrattemperatur während des Wachstums betrug 280 °C. Um zumindest stellenweise einen idealen spektralen Überlapp zwischen der exzitonischen Emission aus den Quantenfilmen und der Kavitätsmode sicherzustellen, wurde die Probe, wie alle anderen VCSEL-Proben, mit einem Dickengradienten der Kavitätsabstandsschicht gewachsen. Messungen an unterschiedlichen Probenpositionen weisen daher eine leicht unterschiedliche spektrale Position der Emission durch die Kavität auf.

Um einen Eindruck von der kristallinen Qualität der Probe zu erhalten, wurden sowohl eine Bruchkante der Probe wie auch die Probenoberfläche im Rasterelektronenmikroskop auf sichtbare Defekte hin untersucht. Das REM-Bild der Bruchkante in Abbildung 5.1 (a) zeigt im unteren DBR wie auch in der Kavitätsabstandsschicht keine sichtbaren Defekte. Erst ab etwa der Hälfte der Spiegelschichten des oberen DBRs bilden sich vermehrt Defekte, welche sich zur Probenoberfläche hin ausbreiten. Dadurch ist schließlich ein Großteil der Probenoberfläche von Defekten durchzogen und nur kleine Bereiche erscheinen defektfrei. Diese Beobachtung kann durch die REM-Aufnahme der Probenoberfläche aus Abbildung 5.1 (b) bestätigt werden. Auf der sehr inhomogenen Oberfläche sind viele linienartige Defekte sichtbar, welche sich hauptsächlich entlang zweier orthogonal zueinander liegender Kristallachsen ausbilden. In den Schnittpunkten dieser Linien bilden sich teilweise flächige Erhebungen mit einer Größe von bis zu 50 μm mal 30 μm aus, in welchen die Probenoberfläche vollständig degradiert wirkt.

Um den Ursprung der Defekte zu klären, zeigen Abbildung 5.1 (c) und (d) HRSTEM-Aufnahmen (*HRSTEM: high-resolution scanning transmission electron microscopy*) von einem Querschnitt der gesamten Mikrokavität an einer vergleichbaren Probe. Mit dieser höheren Auflösung kann man bereits in der unteren DBR-Schicht V-Defekte erkennen. Dieser Typ von Defekten ist bekannt für das II-VI-Materialsystem [261, 262] und entsteht aus

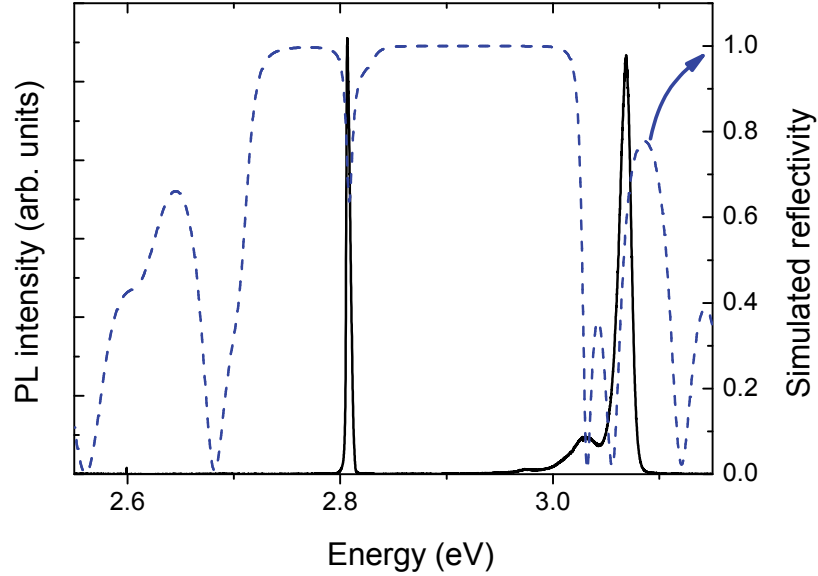


Abbildung 5.2: *PL-Spektrum (durchgezogene Linie) sowie simulierte Reflektivität (gestrichelt) der ZnSe-Quantenfilmstruktur im Bereich des Stopbandes für $T = 4$ K.*

Stapelfehlern. Oftmals haben die V-Defekte ihren Ursprung an oder in der Nähe einer Grenzfläche zwischen epitaktischen Schichten unterschiedlicher Materialzusammensetzung [263]. Aufgrund der großen Anzahl von etwa 500 Grenzschichten in einem DBR mit Übergitter ergibt sich eine erhöhte Wahrscheinlichkeit für die Bildung von Stapelfehlern. In Teilbild (d) ist eine vergrößerte Aufnahme eines Bragg-Paars abgebildet, welches ebenfalls von einem V-förmigen Defekt durchzogen ist und die Entstehung an den Grenzflächen verdeutlicht. Auf der Probenoberfläche sind zwischen den Defekten jedoch Bereiche in der Größenordnung von mindestens $15\text{ }\mu\text{m}$ mal $15\text{ }\mu\text{m}$ frei von sichtbaren Schädigungen, welche für optische Untersuchungen mittels μ -Photolumineszenz und μ -Reflexion ausreichend sind.

Für eine Beurteilung der optischen Qualität des Mikroresonators ist in Abbildung 5.2 ein μ PL-Spektrum im spektralen Bereich von 2.55 eV bis 3.15 eV um das Stopband der Kavität bei 4 K gezeigt, aufgenommen in einem von sichtbaren Defekten freien Probenbereich. Die Anregung erfolgte oberhalb des Stopbandes bei 3.82 eV als Dauerstrich mit etwa 1.1 kW/cm^2 (Spotdurchmesser $d \approx 1.8\text{ }\mu\text{m}$). Die Emission der ZnSe-Quantenfilme aus der Kavität ist als schmale Emissionsbande mit einer Halbwertsbreite von 4.2 meV , zentriert um 2.81 eV zu sehen. Spektral direkt unter- bzw. oberhalb der Kavitätsemission ist die Auskopplung von Photonen dieser Energie durch die DBR-Spiegel nicht möglich, so dass in diesem Bereich keine Emission stattfinden kann. Bei einer Energie von 3.03 eV bzw. 3.07 eV ist die Emission der quaternären ZnMgSSe-Hochindexschicht zu erkennen, wobei die PL-Intensität durch die DBR-Reflexion oszillierend moduliert ist.

Diesem gemessenen PL-Spektrum ist ein simuliertes Reflexionsspektrum der untersuchten planaren VCSEL-Struktur unter senkrechtem Einfall gegenübergestellt. Dabei wurden für die Parameter bei der Berechnung die nominellen Schichtdicken (siehe Abschnitt 4.1.1) sowie Dispersionsrelationen und Absorptionskoeffizienten aus der Literatur verwendet. Das resultierende Spektrum besitzt ein Stopband mit einer spektralen Breite von 296 meV (45 nm) und einer maximalen Reflektivität von 99.6% . Die longitudinale Kavitätsresonanz ist als asymmetrischer, zu höheren Energien verschobener Einbruch der Reflektivität bei 2.81 eV zu sehen

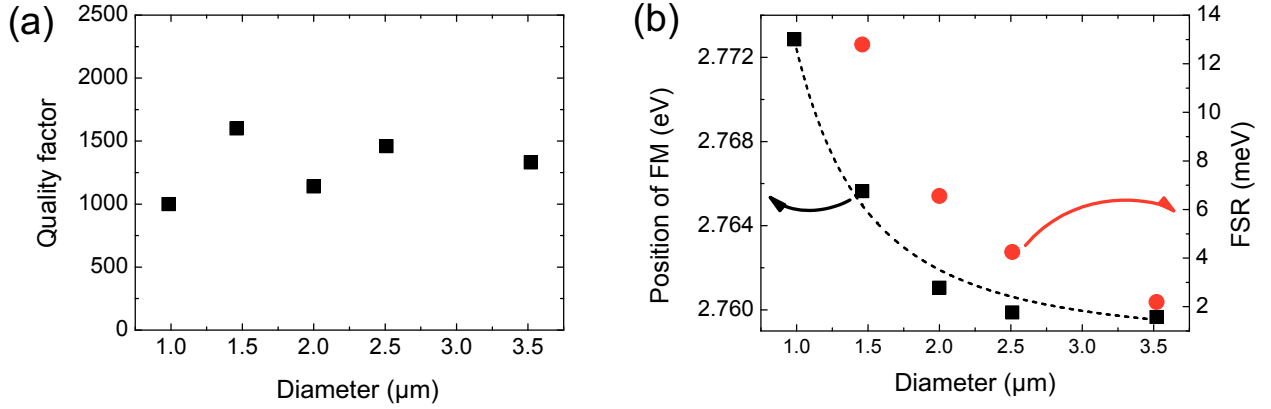


Abbildung 5.3: (a) Q -Faktoren für zirkulare Säulenresonatoren aufgetragen gegen den jeweiligen Säulendurchmesser. (b) Position der fundamentalen Mode (Quadrate) und freier Spektralbereich zwischen der fundamentalen und der ersten höheren Mode (Kreise) in Abhängigkeit vom Durchmesser der Säulenresonatoren. Die gestrichelte Linie stellt eine Anpassung der spektralen Position der fundamentalen Mode nach Gleichung 2.19 mit den Parametern $E_0 = 2.758 \text{ eV}$ und $c = 0.077 \text{ eV}^2/\mu\text{m}^2$ dar.

und besitzt eine Halbwertsbreite von etwa 7.4 meV . Damit kann die berechnete spektrale Lage der Kavitätsresonanz die experimentell erhaltene sehr gut reproduzieren. Ober- bzw. unterhalb des Stoppbandes weist das Reflexionsspektrum den charakteristischen oszillatorischen Verlauf auf. Das Reflexionsspektrum besitzt exakt an den beiden spektralen Positionen ein Minimum, an welchen die Emission aus den quaternären ZnMgSSe-Hochindexschichten ein Emissionsmaximum aufweist, was erneut die gute Übereinstimmung zwischen Experiment und Simulation zeigt.

Der präziseste Weg Aussagen über die optische Qualität der Proben treffen zu können, ist die Bestimmung des Q -Faktors aus PL-Messungen der Fundamentalmode von Säulenresonatoren. Mit diesem etwas aufwändig erscheinenden Verfahren lässt sich eine verfälschende Verbreiterung durch Probeninhomogenitäten bei einer makroskopischen Reflexionsmessung oder Fehlinterpretationen durch Beugungseffekte bei einer mikroskopischen Reflexionsmessung vermeiden [204]. Daher wurden mit dem in Abschnitt 4.2 beschriebenen Verfahren des fokussierten Ionenstrahlätzens in von sichtbaren Defekten freien Bereichen der Probe zirkulare Säulenresonatoren hergestellt. Die Säulenresonatoren mit Durchmessern im Bereich von $1 \mu\text{m}$ bis $3.5 \mu\text{m}$ wurden anschließend mittels μPL -Spektroskopie charakterisiert.

In Abbildung 5.3 (a) sind die aus der Halbwertsbreite der Fundamentalmodes ermittelten Q -Faktoren der entsprechenden Säulenresonatoren gegen den Durchmesser aufgetragen. Die Q -Faktoren streuen um einen Wert von etwa 1300, wobei der Maximalwert von $Q = 1600$ bereits für einen verhältnismäßig kleinen Durchmesser von $d = 1.46 \mu\text{m}$ erreicht wird. Dieser Q -Faktor ist damit etwa halb so groß wie der maximale Wert von 3500 für die Quantenfilm-VCSEL-Strukturen im blau-grünen Spektralbereich [76, 240]. Eine Abhängigkeit des Q -Faktors vom Durchmesser der Säulenresonatoren, wie man sie generell erwartet [202], konnte nicht beobachtet werden. Dies liegt vermutlich in den insgesamt recht geringen Q -Faktoren der Strukturen begründet. Eine zusätzliche geringe Rauigkeit der Seitenwände, welche nach Gleichung 2.21 die Abhängigkeit des Q -Faktors vom Durchmesser verursacht, hat auf den Q -Faktor keinen weiteren signifikanten Einfluss, so dass dieser zumindest im vermessenen Bereich unabhängig

vom Durchmesser der Säulenresonatoren wird. Eine weitere Erklärungsmöglichkeit liegt in den sowohl auf der Probenoberfläche wie auch im Probenquerschnitt sichtbaren Defekten begründet. Auch wenn die Säulenresonatoren in einem Gebiet ohne sichtbare Beeinträchtigung der Probenoberfläche prozessiert wurden, so ist doch für einige Mikrokavitäten eine Beeinträchtigung der Qualität der Spiegel denkbar, welche zu einem verringerten Q-Faktor und damit zu einer Abweichung vom theoretisch erwarteten Verlauf führt. Eine endgültige Klärung des Sachverhalts kann aber wegen der geringen Anzahl an Messpunkten nicht gegeben werden. In Abbildung 5.3 (b) ist die spektrale Position der Fundamentalmode (Quadrant) zusammen mit dem freien Spektralbereich (FSR, Kreise) zwischen der Fundamentalmode und der ersten höheren Mode gegen den jeweiligen Durchmesser der Säulenresonatoren aufgetragen. Mit abnehmendem Durchmesser der Säulenresonatoren wird dabei die spektrale Position der Fundamentalmode zu größeren Energien hin verschoben. Gleichzeitig wird der freie Spektralbereich zwischen den Moden ebenfalls größer. Diese Beobachtungen entsprechen den Erwartungen nach Formel 2.19, welche aufgrund des stärkeren optischen Einschlusses bei kleinerem Säulendurchmesser eine spektrale Verschiebung der Moden zu größeren Energien beschreibt. Eine Anpassung der Messwerte mit dieser Formel ist als gestrichelte Linie in Abbildung 5.3 (b) gezeigt und spiegelt den experimentellen Verlauf gut wider.

Der maximale ermittelte Q-Faktor von 1 600 zusammen mit der zumindest stellenweise guten strukturellen Qualität der Proben ist viel versprechend, um im Folgenden durch Schwellenmessungen das Einsetzen stimulierter Emission zu überprüfen. Um eine thermische Überlastung der Strukturen zu vermeiden, wurden die Experimente unter gepulster Anregung mit dem in Abschnitt 4.3 beschriebenen μ PL-Aufbau und einem Ti:Sa-Kurzpulslasersystem durchgeführt. Die zur Anregung verwendeten Laserpulse hatten bei einer Photonenenergie von 3.1 eV eine Pulslänge von etwa 120 fs und eine Wiederholrate von 82 MHz ($\bar{t} = 12.2$ ns). Die Detektion erfolgte mit Integrationszeiten unterhalb einer Sekunde.

In Abbildung 5.4 (a) sind die PL-Spektren der planaren Probe unter steigender Pulsenergie der Anregung aufgetragen. Angegeben ist jeweils die Pulsenergie bezüglich der Laserschwelle. Das gestrichelte Spektrum weit unterhalb der Laserschwelle wurde der Übersichtlichkeit halber um den Faktor 15 vergrößert dargestellt. Für kleine Anregungsenergien (gestricheltes Spektrum) sieht man die spektral breite Emission der Kavitätsresonanz. Bei einer Erhöhung der Pulsenergie steigt die PL-Intensität zunächst linear an, bis sich aus dem Gesamtspektrum bei etwa 2.764 eV eine scharfe Emissionslinie ausbildet. In Abbildung 5.4 (b) ist die Intensität der dominierenden Emissionslinie gegen die Anregungsdichte für die Spektren aus Teilbild (a) dargestellt (Quadrat). Ab einer Pulsenergie von $E_{th} = 456$ pJ steigt die PL-Intensität stark an. Dieses Schwellenverhalten ist ein deutliches Indiz für das Einsetzen von stimulierter Emission.

Ein solches Schwellenverhalten konnte an vereinzelt Stellen der Probe gemessen werden, die Laserschwelle einer zweiten Messung ist in Abbildung 5.4 (b) durch Kreise dargestellt. Die aus dieser zweiten Messung bestimmte Laserschwelle beträgt mit $E_{th} = 179$ pJ etwa 39 % der ersten Laserschwelle. Ab einer Pulsenergie von etwa 300 pJ bricht bei dieser Messung die Intensität der Photolumineszenz vollständig ein, was auf eine thermische Zerstörung der Probe hindeutet. Diese Zerstörungsschwelle liegt weit unterhalb der Laserschwelle der ersten Messung. Damit erscheint eine irreversible Schädigung der Probe vor Erreichen der Laserschwelle als Ursache der nur an einzelnen Stellen messbaren stimulierten Emission naheliegend. Ein weiteres Indiz für eine thermische Schädigung der Probe ist die bei zunehmender Pulsenergie beobachtete Verschiebung der spektralen Position der Laseremission zu kleineren Energien.

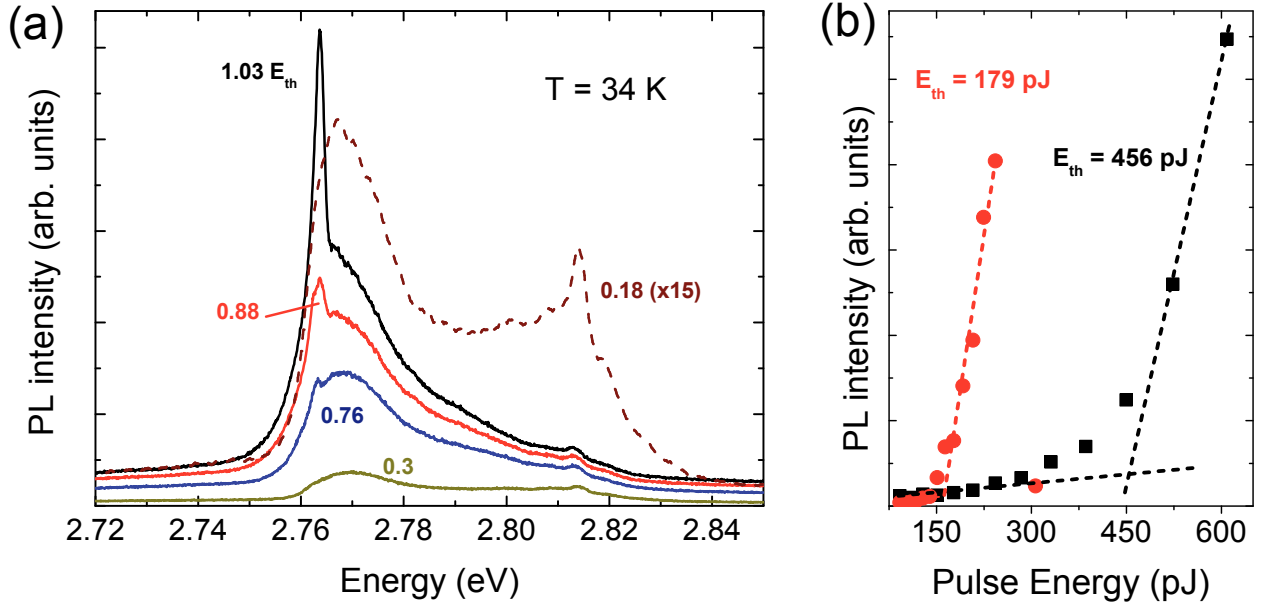


Abbildung 5.4: (a) PL-Spektren der planaren VCSEL-Struktur für steigende Anregungsdichten bei 34 K (lineare Skala). Angegeben ist jeweils die Pulsenergie bezüglich der Laserschwelle. Für die Messung weit unterhalb der Schwelle (gestrichelt) ist zusätzlich der Skalierungsfaktor angegeben. (b) Intensität der bei hohen Leistungen dominierenden Emissionslinie in Abhängigkeit von der Pulsenergie der Anregung für die in (a) gezeigten Spektren (Quadrate) und eine zweite Messung (Kreise). Zur Ermittlung der Laserschwelle wurden die Bereiche weit unterhalb bzw. oberhalb des superlinearen Anstiegs durch Geraden angenähert.

Dieses Verhalten deutet auf eine Erwärmung der Probe hin, welche zu einer Verringerung der Bandlücke und somit zu einer geringeren mittleren Emissionsenergie führt.

Für die im blau-grünen Spektralbereich emittierenden VCSEL mit ZnCdSSe-Quantenfilmen konnte für einen Säulenresonator mit einem Durchmesser von $3.5\ \mu\text{m}$ eine Laserschwelle von $0.9\ \text{pJ}$ gezeigt werden ($T=280\ \text{K}$) [76, 240]. Damit liegt diese Laserschwelle mehr als zwei Größenordnungen unter der kleinsten hier gemessenen Laserschwelle von $179\ \text{pJ}$, was das noch vorhandene Entwicklungspotential der hier vorgestellten VCSEL zeigt. Die angegebenen Werte beziehen sich jedoch jeweils auf die Pulsenergie, welche auf die Oberfläche der Probe trifft, und nicht auf die absorbierte Energie, welche tatsächlich zur Erzeugung von Elektron-Loch-Paaren in der ZnSe-Schicht zur Verfügung steht. Die VCSEL mit ZnCdSSe-Quantenfilmen zeigten bereits bei einer maximalen externen Pulsenergie von $1.25\ \text{pJ}$ eine dauerhafte Schädigung der Quantenfilme [76], während bei den hier vorgestellten VCSELn mit ZnSe-Quantenfilmen die Laserschwelle teilweise erst bei $456\ \text{pJ}$ erreicht wird. Dies deutet auf eine sehr geringe Absorption der anregenden Photonen in den ZnSe-Quantenfilm-VCSELn und eine entsprechend geringe Anzahl generierter Ladungsträger hin. Berechnet man die Bandlücke $E_{\text{RT}}(x_{\text{Mg}}, y_{\text{S}})$ für die Kavitätsabstandsschicht aus $\text{Zn}_{0.72}\text{Mg}_{0.28}\text{S}_{0.29}\text{Se}_{0.71}$ nach [264], so erhält man bei Raumtemperatur einen Wert von etwa $E_{\text{RT}}(0.28, 0.29) = 3.09\ \text{eV}$. Da die Schwellenmessungen bei tiefen Temperaturen durchgeführt wurden, muss noch die temperaturbedingte Vergrößerung der Bandlücke von etwa $110\ \text{meV}$ [265] bei Abkühlen der Probe beachtet werden, so dass sich bei tiefen Temperaturen eine Bandlücke von etwa $3.20\ \text{eV}$ ergibt. Diese Energie ist $10\ \text{meV}$ größer als die Energie der anregenden Photonen von $3.1\ \text{eV}$, wodurch das anregende Laserlicht von der Kavitätsabstandsschicht nicht absorbiert werden kann. Die

Absorption der anregenden Photonen erfolgt daher lediglich in den drei ZnSe-Quantenfilmen. Aufgrund der geringen Dicke der Quantenfilme und der folglich geringen Absorption passiert ein Großteil der Photonen des Pumpasers die Kavität und wird erst im GaAs-Substrat absorbiert. Bei dieser Gegenüberstellung muss jedoch im Gegenzug beachtet werden, dass bei der ZnSe-Quantenfilmprobe der Großteil der absorbierten Energie in den ZnSe-Quantenfilmen absorbiert wird und durch eine strahlende Rekombination direkt zur Quantenfilmemission beitragen kann. In den ZnCdSSe-Quantenfilm-VCSELn wird jedoch der Hauptteil der Energie in der Kavitätsabstandsschicht absorbiert, von welcher aus nur ein Teil der Ladungsträger in die Quantenfilme relaxiert, um dort strahlend zu rekombinieren.

Trotz der vermutlich geringen Absorption und der damit verbundenen hohen Laserschwellen konnte mit den hier gezeigten Messungen erstmals eine stimulierte Emission in monolithisch hergestellten ZnSe-Quantenfilm-Mikrokavitäten unter gepulster optischer Anregung nachgewiesen werden.

5.2 Photonisches Lasing und starke Kopplung in monolithischen ZnSe-Quantenfilm-VCSELn

Für systematische Untersuchungen und insbesondere den kommerziellen Einsatz ist eine deutliche Reduktion der Laserschwelle der VCSEL von fundamentaler Bedeutung. Da die hohe Laserschwelle der bisherigen Proben vermutlich in einer geringen Absorption des Pumpasers in der Kavitätsabstandsschicht begründet liegt, wurde diese Absorption in einer zweiten Probenreihe erhöht. Dazu wurde, bei identischem Aufbau der VCSEL, der Magnesiumgehalt der ZnMgSSe- λ -Kavitätsabstandsschicht von 28 % auf 19 % und der Schwefelanteil von 29 % auf 20 % verringert. Die Berechnung der Bandlücke $E_{RT}(x_{Mg}, y_S)$ für die veränderte Kavitätsabstandsschicht aus $Zn_{0.81}Mg_{0.19}S_{0.20}Se_{0.80}$ nach [264] liefert einen Wert von etwa $E_{RT}(0.19, 0.20) = 2.94 \text{ eV}$ für Raumtemperatur und entsprechend von etwa 3.05 eV für tiefe

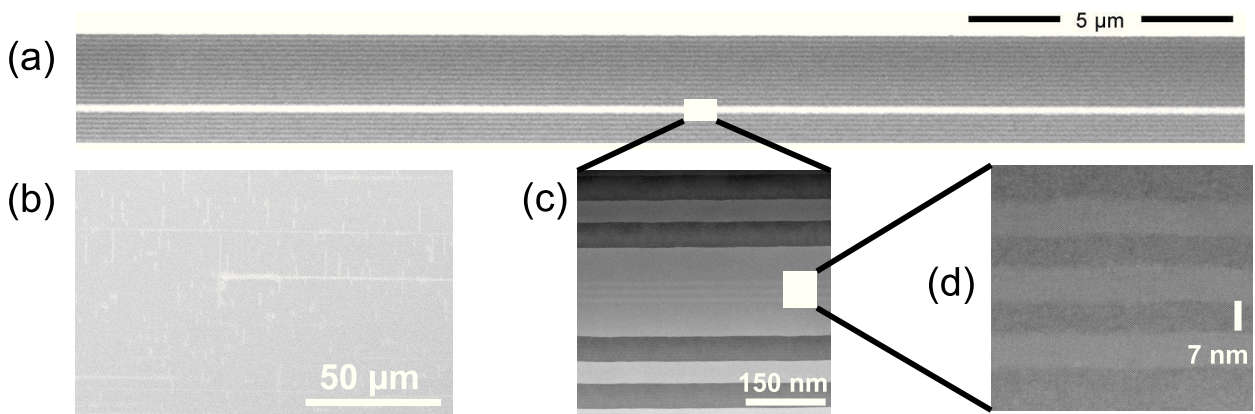


Abbildung 5.5: REM-Aufnahme der Bruchkante (a) und der Probenoberfläche (b) des monolithischen ZnSe-QW-VCSEL mit einem Magnesiumanteil von 19 % und einem Schwefelanteil von 20 % in der Hochindexschicht sowie einer Wachstumstemperatur von 310 °C. (c) HRSTEM-Aufnahme des Bereichs um die Kavitätsabstandsschicht mit einem vergrößerten Ausschnitt der Quantenfilme (d). Bild (a) aufgenommen von Dr. T. Aschenbrenner, AG Hommel, Bilder (c) und (d) von S. Bley, AG Rosenauer.

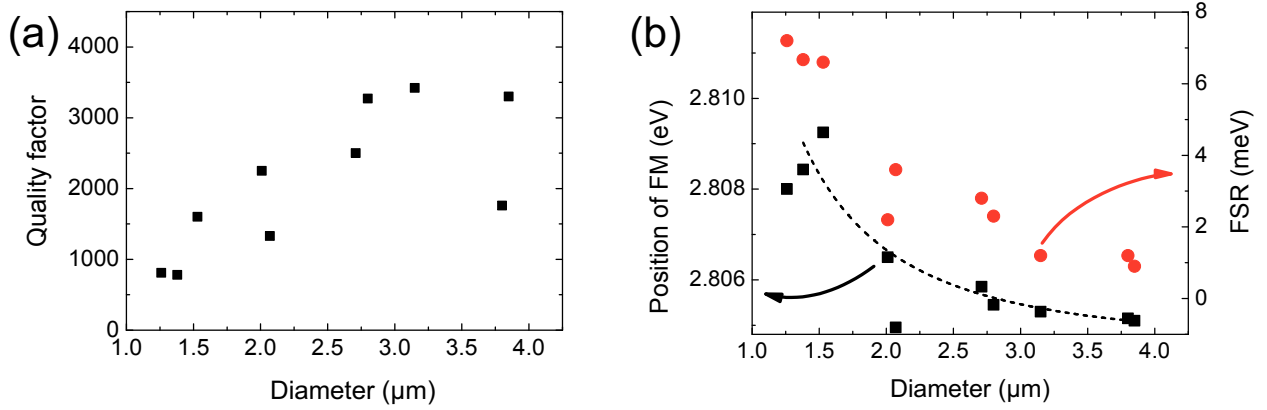


Abbildung 5.6: (a) Q -Faktoren für zirkuläre Säulenresonatoren aufgetragen gegen den jeweiligen Säulendurchmesser. (b) Position der fundamentalen Mode (Quadrate) und freier Spektralbereich zwischen der fundamentalen und der ersten höheren Mode (Kreise) in Abhängigkeit vom Durchmesser der Säulenresonatoren. Die gestrichelte Linie stellt eine Anpassung der spektralen Position der fundamentalen Mode nach Gleichung 2.19 mit den Parametern $E_0 = 2.805 \text{ eV}$ und $c = 0.048 \text{ eV}^2/\mu\text{m}^2$ dar.

Temperaturen [265]. Durch die Reduktion des Magnesium- und Schwefelanteils sollte die Bandlücke folglich um 140 meV verringert werden und damit deutlich unterhalb der zur Anregung verwendeten Photonenenergie liegen. Dadurch wird eine Absorption des Pumplichts auch in der Kavitätsabstandsschicht möglich, was zu einer wesentlich stärkeren Absorption und damit zu einer verringerten Laserschwelle führen sollte. Zur Verbesserung der Probenqualität wurde für die Substrattemperatur während des Wachstums anstatt der für die bisherigen VCSEL verwendeten 280 °C eine erhöhte Temperatur von 310 °C gewählt.

Eine Untersuchung des Einflusses dieser erhöhten Wachstumstemperatur auf die Probenqualität erfolgte durch eine Charakterisierung mittels Elektronenmikroskopie. In Abbildung 5.5 sind REM-Aufnahmen einer Bruchkante (a) sowie der Probenoberfläche (b) gezeigt. Die Querschnittsaufnahme durch die Kavität weist keinerlei sichtbare Defekte auf. Auch die Liniendefekte auf der Probenoberfläche sind deutlich reduziert, wie ein Vergleich zu Abbildung 5.1 (b) zeigt. Um eventuelle strukturelle Defekte nachzuweisen, welche unterhalb des Auflösungsvermögens des Rasterelektronenmikroskops liegen, wurden an der Querschnittsfläche der Kavität HRSTEM-Untersuchungen durchgeführt. In Abbildung 5.5 (c) ist die Region um die Kavitätsabstandsschicht zu sehen, für welche keine Anzeichen für Stapelfehler oder V-Defekte zu erkennen sind. Die drei ZnSe-Quantenfilme sind als hellere Schichten mittig in der Kavitätsabstandsschicht zu erkennen und in Teilbild (d) vergrößert dargestellt. Auch bei dieser Aufnahme sind keine Anzeichen für Defekte erkennbar, zudem sprechen die scharfen Übergänge zwischen den Quantenfilmen und Abstandsschichten für eine gute Qualität der Probe. Die beabsichtigten Schichtdicken von Kavität (166 nm), Quantenfilmen (8 nm), Abstandsschichten zwischen den Quantenfilmen (7 nm) und DBR-Schichten konnten mit einer hohen Genauigkeit erreicht werden. Im Vergleich zu Abbildung 5.1 konnte die sichtbare Qualität der Probe durch die um 30 °C höhere Wachstumstemperatur deutlich verbessert werden.

Um zu klären wie sich die bessere kristalline Probenqualität auf die optischen Eigenschaften auswirkt, wurden erneut zirkuläre Säulenresonatoren mit verschiedenen Durch-

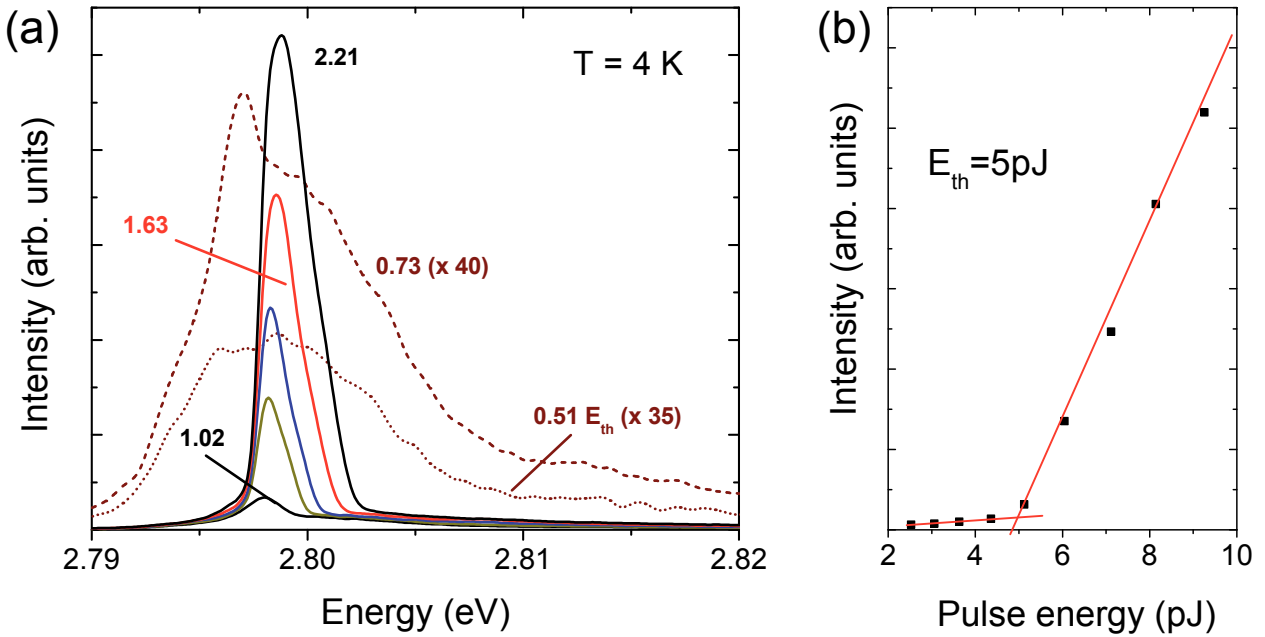


Abbildung 5.7: (a) μ PL Spektren der planaren VCSEL-Struktur für steigende Anregungsdichten bei 4 K (lineare Skala). Angegeben ist jeweils die Pulsenergie bezüglich der Laserschwelle. Für die Messung weit unterhalb (gepunktet) bzw. nahe der Schwelle (gestrichelt) ist zusätzlich der Skalierungsfaktor angegeben. (b) Intensität der bei hohen Leistungen dominierenden Emissionslinie in Abhängigkeit von der Pulsenergie der Anregung. Zur Ermittlung der Laserschwelle wurden die Bereiche weit unterhalb bzw. oberhalb des superlinearen Anstiegs durch Geraden angenähert.

messern im Bereich von 1.26 μ m bis 3.85 μ m mittels FIB in Probenbereichen prozessiert, welche frei von sichtbaren Defekten sind. Die Ergebnisse der μ PL-Charakterisierung der Säulenresonatoren hinsichtlich der spektralen Lage der fundamentalen Mode, des freien Spektralbereichs sowie der Q-Faktoren sind in Abbildung 5.6 gegen den Durchmesser der jeweiligen Säulenresonatoren aufgetragen. Für die Q-Faktoren zeigt sich die erwartete Zunahme bei größeren Säulendurchmessern, jedoch behaftet mit einer recht großen Streuung der Messwerte. Insgesamt ist der in PL-Messungen maximal erreichte Q-Faktor von 3420 mehr als doppelt so hoch wie bei den VCSEL-Strukturen aus dem vorigen Abschnitt. Dies spricht für eine deutliche Verbesserung der optischen Probenqualität durch die Erhöhung der Wachstumstemperatur und bestätigt damit die Ergebnisse der REM und HRSTEM Untersuchungen. Wie in Abbildung 5.6 (b) zu sehen, verschiebt sich die Lage der fundamentalen Mode mit abnehmendem Säulendurchmesser erwartungsgemäß in hyperbolischer Weise zu größeren Energien. Der freie Spektralbereich zwischen der fundamentalen und der ersten höheren Mode entspricht ebenfalls dem erwarteten Verlauf und wird für kleinere Durchmesser größer. Beide Verläufe sind jedoch mit einer recht großen Fluktuation der Messwerte behaftet. Diese relativ großen Schwankungen in den Messwerten können nicht allein durch Messungenauigkeiten erklärt werden und deuten auf eine lokal unterschiedlich ausgeprägte Qualität der Probe hin.

Im Folgenden soll geklärt werden, wie sich die verbesserte Probenqualität auf die Laserschwelle der VCSEL auswirkt. Die Anregung der Probe erfolgte nicht-resonant in einem zweiten μ PL-Messplatz (siehe Abschnitt 4.3), bei welchem die Photonenenergie der Anre-

gung von etwa 2.95 eV bis 3.06 eV frei einstellbar ist. Die maximale PL-Intensität bei 4 K wurde für eine Photonenenergie von 2.99 eV erreicht, mit welcher die folgenden Messungen durchgeführt wurden. Da diese Photonenenergie 5 meV unterhalb der berechneten Bandlücke von $\text{Zn}_{0.81}\text{Mg}_{0.19}\text{S}_{0.20}\text{Se}_{0.80}$ liegt, deutet dies auf eine leicht abweichende chemische Zusammensetzung der Kavitätsabstandsschicht hin. Eine solch geringe Abweichung liegt jedoch innerhalb des experimentell bestimmbaren Rahmens [243]. Zur Vermeidung einer thermischen Schädigung bei höheren Anregungsdichten erfolgte die Anregung gepulst mit einer Pulslänge von etwa 100 fs und einer Wiederholrate von 94 MHz ($\bar{t} = 10.6$ ns).

In Abbildung 5.7 (a) sind bei unterschiedlichen Anregungsdichten aufgenommene PL-Spektren dargestellt. Zwei Spektren für ausgewählte niedrige Pulsenergien sind gepunktet bzw. gestrichelt dargestellt und zur besseren Sichtbarkeit um die gekennzeichneten Faktoren vergrößert. Mit steigender Pulsenergie weist die Emission ein deutliches Schwellenverhalten auf. Die bei Pulsenergien oberhalb der Laserschwelle aufgenommenen Spektren zeigen eine spektral scharfe Emission. Zur Bestimmung der exakten Laserschwelle wurde in Abbildung 5.7 (b) die Intensität der Resonanz gegenüber der anregenden Pulsenergie aufgetragen. Aus dem Schnittpunkt der beiden linearen Anpassungen an die Bereiche unterhalb bzw. oberhalb der Schwelle ergibt sich für diese Messung eine Laserschwelle von etwa $E_{\text{th}} \approx 5$ pJ. Dieser Wert ist um einen Faktor 34 kleiner als die kleinste Laserschwelle aus dem vorherigen Abschnitt. Die Reduzierung der Laserschwelle ist dabei vermutlich ein kombinierter Effekt aus einer höheren Absorption des Pumplasers sowie der verbesserten Probenqualität.

An der Laserschwelle gleicht die absorbierte Pumpleistung $\alpha \cdot \langle P_{ex} \rangle$ mit α als Absorptionskoeffizient der externen Pumpleistung P_{ext} im zeitlichen Mittel gerade die passiven strahlenden Verluste der Kavität B/Q (B: Proportionalitätskonstante) plus die aktiven Kavitätsverluste durch Absorption P_A aus [266]:

$$\frac{B}{Q} + P_A = \alpha \cdot P_{ex} \quad . \quad (5.1)$$

Die aktiven Kavitätsverluste beinhalten dabei alle Verluste, durch welche die Ladungsträger für eine strahlende Rekombination in den ZnSe-Quantenfilmen verloren gehen. Die passiven strahlenden Verluste beziehen sich auf den Teil der absorbierten Ladungsträger, welcher zu einer Besetzungsinversion in den ZnSe-Quantenfilmen führt und schließlich durch eine strahlende Rekombination die Kavität verlässt. Für eine erste Abschätzung sollen die Absorptionseffekte vernachlässigt werden, wodurch die externe Pumpleistung proportional zu $1/(Q\alpha)$ wird. Während die Verbesserung des Q-Faktors der planaren Probe recht gut bekannt ist und etwa einen Faktor Zwei ausmacht, kann der Einfluss der verbesserten Absorption nur grob zu einem Faktor Zehn abgeschätzt werden [243]. Insgesamt ergibt sich damit aus der Abschätzung eine Verringerung der Laserschwelle um einen Faktor von etwa 20. Da die experimentell bestimmte Laserschwelle der verbesserten Probe gegenüber der nicht-optimierten Probe um einen Faktor von 34 verringert werden konnte, spielen vermutlich noch weitere Effekte eine Rolle. Ein solcher Effekt könnte eine Reduzierung der aktiven Kavitätsverluste durch Absorption sein, welche bei dieser Abschätzung vernachlässigt wurden.

Betrachtet man die Spektren aus Abbildung 5.7 (a) oberhalb der Laserschwelle, so stellt man mit zunehmender Pulsenergie eine spektrale Verbreiterung der Moden zu höheren Energien hin fest. Dieses Anwachsen der Mode zu höheren Energien deutet auf ein Auffüllen höherenergetischer Zustände in den Bändern hin (sog. band filling). Ein Hinweis auf eine Erwärmung der Probe oder das Einsetzen von thermischen Schädigungen durch eine Verschie-

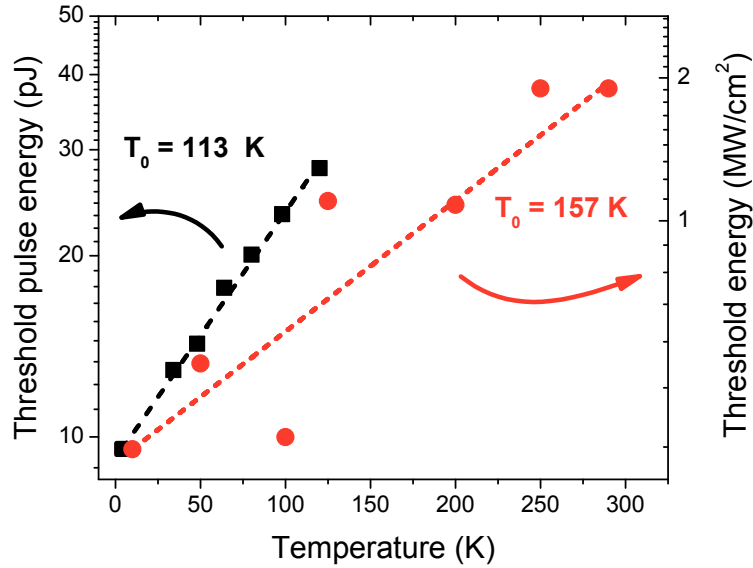


Abbildung 5.8: Laserschwellen des ZnSe-Quantenfilm-VCSELs (Quadrate) und eines ZnCdSSe-Quantenfilm-VCSELs (Kreise, Daten aus [260]) in Abhängigkeit von der Proben temperatur. Die Messwerte wurden jeweils nach Gleichung 2.32 mit einem Wert von $T_0(\text{ZnSe}) = (113 \pm 3) \text{ K}$ und $T_0(\text{ZnCdSSe}) = (157 \pm 9) \text{ K}$ angepasst.

bung der Emissionsenergie zu kleineren Energien konnte hingegen nicht beobachtet werden.

Um das Temperaturverhalten der Laserschwelle zu untersuchen, wurden die Schwellenmessungen an derselben Probenstelle bei verschiedenen Temperaturen durchgeführt. Für die bei hohen Anregungsdichten dominierende Emissionslinie der PL-Spektren wurde jeweils die Laserschwelle bestimmt und in Abbildung 5.8 gegen die entsprechende nominelle Proben temperatur aufgetragen (Quadrate). Mit zunehmender Temperatur ist dabei in der logarithmischen Darstellung ein linearer Anstieg der Laserschwelle zu erkennen. Die maximale Temperatur, bei der eine stimulierte Emission nachgewiesen werden konnte, beträgt 120 °K . Bei dieser Temperatur erhöhte sich die Laserschwelle auf etwa 30 pJ . Die gestrichelte Linie stellt eine Anpassung der Messwerte nach Gleichung 2.32 mit $T_0(\text{ZnSe}) = (113 \pm 3) \text{ K}$ dar, welche die Zunahme der Laserschwelle aufgrund einer thermisch induzierten Entleerung des Laserniveaus beschreibt (siehe Abschnitt 2.4.1).

Für einen Vergleich der Temperaturstabilität der Laserschwelle wurden in Abbildung 5.8 die Laserschwellen eines ZnCdSSe-Quantenfilm-VCSELs in Abhängigkeit von der Temperatur eingetragen [260]. Jedoch ist zu beachten, dass diese Werte unter einer quasi-kontinuierlichen Anregung mit Pulsen im Bereich von Nanosekunden erzielt wurden und daher die Intensität auf einer separaten Skala aufgetragen ist. Durch eine Anpassung der Messwerte nach Gleichung 2.32 ergibt sich für diesen VCSEL ein Wert von $T_0(\text{ZnCdSSe}) = (157 \pm 9) \text{ K}$. Der geringere Wert von T_0 des ZnSe-Quantenfilm-VCSELs verdeutlicht eine etwas stärkere Temperaturabhängigkeit der Laserschwelle im Vergleich zum ZnCdSSe-QW-VCSEL.

Bei VCSELn hängt die Laserschwelle auch vom temperaturabhängigen spektralen Überlapp zwischen Kavitätsresonanz und Exzitonenenergie ab. Für deren Verstimmung wurde in einer vorherigen Messung bei 10 K ein Wert von etwa $\delta = -11 \text{ meV}$ bestimmt. Da die spektrale Lage der Quantenfilmmission eine stärkere Temperaturabhängigkeit aufweist als die Kavitätsmode, verringert sich mit zunehmender Temperatur die spektrale Ver-

stimmung. Aus den bekannten Abhängigkeiten der Bandlücke von ZnSe [267] sowie der Kavitätsresonanz eines ähnlichen VCSELs [76] von der Temperatur kann für die Resonanz von Quantenfilmemission und Kavitätsmode in der vorliegenden Probe ein Wert von etwa 105 K abgeschätzt werden. Bei dieser Temperatur ist der spektrale Überlapp zwischen Quantenfilmemission und Resonatormode am größten, folglich sollte die Laserschwelle hier am kleinsten sein. Die erwartete Abnahme der Laserschwelle mit zunehmender Temperatur konnte experimentell nicht nachgewiesen werden, was verschiedene Gründe haben kann. Zum einen wurde die spektrale Verstimmung von $\delta = -11$ meV an einer anderen Probenposition bestimmt und muss daher wegen des Dickengradienten der Kavitätsabstandsschicht nicht mit der Verstimmung an der Probenposition der Schwellenmessungen übereinstimmen. Zum anderen steigt die Laserschwelle generell mit steigender Temperatur aufgrund einer thermisch induzierten Entleerung des Laserniveaus an. Dieser Anstieg scheint weitaus stärker zu sein als die Auswirkung einer besseren Ankopplung der Quantenfilmemission an die Kavitätsmode, so dass sich insgesamt eine mit zunehmender Temperatur ebenfalls zunehmende Laserschwelle ergibt.

Um eine Einordnung der hier an monolithischen ZnSe-Quantenfilm-Mikrokavität bestimmten minimalen Laserschwelle in bisherige Forschungen vorzunehmen, muss auf vergleichbare gepulste Anregungsbedingungen geachtet werden. Für einen Vergleich ist zudem die Energiedichte entscheidend, welche sich für die hier präsentierten Untersuchungen für eine Pulsenergie von 5 pJ und einen Strahldurchmesser von 2 μm zu 0.16 mJ/cm^2 abschätzen lässt.

Für das GaN-Materialsystem konnten *Feltin et al.* an einer Mikrokavität mit drei InGaN/GaN-Quantenfilmen und vergleichbaren Anregungsbedingungen für eine Wellenlänge von 442 nm bei Raumtemperatur stimulierte Emission nachweisen [268]. Die Energiedichte an der Laserschwelle wurde zu 0.2 mJ/cm^2 bestimmt. Damit liegt die in diesem Kapitel bestimmte Energiedichte der Laserschwelle des II-VI-Materialsystems geringfügig unterhalb der für Nitrid-basierte VCSEL bestimmten Schwelle. Zwar wurde der Wert für die Nitrid-basierten Strukturen bei Raumtemperatur erzielt, jedoch bestand die verwendete Mikrokavität aus einer hybriden Struktur mit lediglich einem unteren monolithischen DBR-Spiegel aus AlInN/GaN. Der oberen Spiegel wurde hingegen aus SiO_2/SiN hergestellt.

Obwohl die Messungen bei unterschiedlichen Temperaturen durchgeführt wurden, zeigt dieser Vergleich dennoch das Potential der monolithischen ZnSe-Quantenfilm-VCSEL, bei welchen mit monolithischen Mikrokavitäten eine vergleichbare Laserschwelle wie bei den Nitriden mit hybriden Strukturen erreicht wird.

Da die Probe trotz einer nahezu defektfreien strukturellen Qualität (siehe Abbildung 5.5) nur ein stellenweises Lasing zeigte, wurden zur weiteren Charakterisierung an der planaren Probe μ -Reflexionsmessungen durchgeführt. Diese sind in Abbildung 5.9 der mit CAMFR berechneten Reflektivität gegenüber gestellt. Aus den Reflexionsmessungen lässt sich zwischen 2.68 eV und 3.01 eV ein Stoppband mit einer Breite von 330 meV erkennen. Mittig im Stoppband bei 2.800 eV und 2.819 eV sind zwei Einbrüche in der Reflexion zu erkennen. Diese beiden spektral um 19 meV voneinander entfernten Minima sind charakteristisch für ein System, welches sich im Bereich der starken Kopplung befindet. Sie können dem unteren und oberen Polariton zugeordnet werden. Für die Simulation wurden als Parameter die beabsichtigten Schichtdicken sowie die Dispersionsrelationen, Absorptionskoeffizienten und Oszillatorstärke von $f_{osc} = 1.78 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ pro Quantenfilm aus der Literatur [269] verwendet. Die spektrale Breite der exzitonischen Quantenfilmlumineszenz, die ebenfalls in die Rechnung

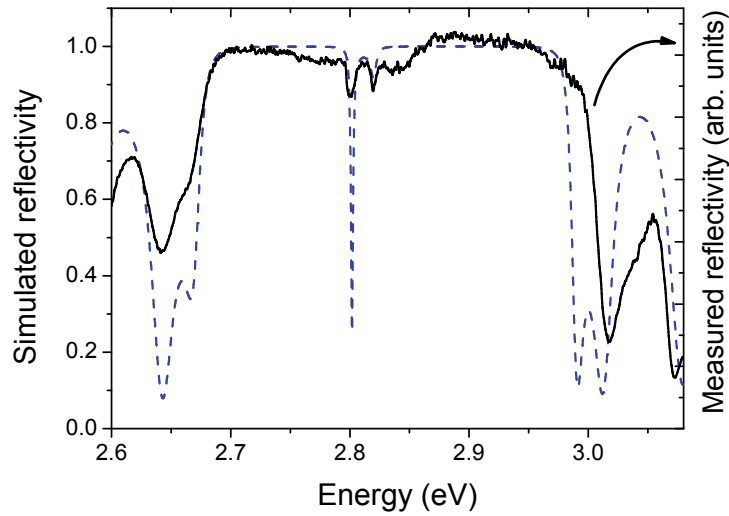


Abbildung 5.9: Berechnete und gemessene μ -Reflektivität der bei einer höheren Temperatur hergestellten VCSEL-Struktur ($T=70\text{ K}$).

eingeht, wurde an Hand einer Referenzprobe ohne Kavität bestimmt. Sowohl die Breite des Stoppbandes, die Oszillation der Reflexion auf der nieder- und hochenergetischen Seite des Stoppbandes wie auch die spektrale Lage des unteren und oberen Polaritons werden von den Simulationen gut reproduziert. Aus den Berechnungen ergibt sich eine maximale Reflektivität von 99.9 % für das Stoppband. Die Ursache für die unterschiedlichen Intensitäten der beiden Einbrüche der Reflexion bei 2.800 eV bzw. 2.819 eV liegt vermutlich in einer negativen spektralen Verstimmung zwischen Kavitätsphoton und Exziton begründet. Da in der Messung stets über einen gewissen räumlichen Bereich mit leicht unterschiedlichen optischen Eigenschaften gemittelt wird, ist der experimentelle Einbruch in der Reflektivität nicht so deutlich zu erkennen wie in der Simulation.

Durch eine geringfügige, in Abschnitt 4.3 beschriebene Modifikation des μ PL-Aufbaus lassen sich winkelaufgelöste Reflexionsmessungen durchführen. Auf diese Weise kann die Dispersionsrelation der Polaritonen räumlich auf dem CCD-Chip der Spektrometerkamera abgebildet werden. In Abbildung 5.10 (a) ist die μ -Reflexion der planaren Probe in Abhängigkeit von Energie und Wellenvektor k gezeigt ($T = 4\text{ K}$). Die horizontalen Streifen bei konstantem Wellenvektor sind auf Verunreinigungen auf den optischen Komponenten im Nachweisstrahlengang zurückzuführen [270]. Sowohl die Dispersionsrelation des unteren Polaritons (LP) mit einer Energie von $E(k=0) = 2.807\text{ eV}$ wie auch die des oberen Polaritons (UP) bei $E(k=0) = 2.829\text{ eV}$ sind als deutliche Einbrüche der Reflektivität zu erkennen. Aus den Dispersionsrelationen lässt sich für $k=0$ eine Rabi-Aufspaltung von 22 meV ermitteln. Spektral etwa 4 meV oberhalb der Dispersionsrelation des unteren Polaritons ist eine weitere, schwach ausgeprägte Linie erkennbar, die ebenfalls den charakteristischen Verlauf des unteren Polaritons aufweist. Betrachtet man das Reflexionsspektrum für $k=0$, so lässt sich aus diesem die spektrale Breite der Resonanz ohne den Einfluss der Dispersion bestimmen. Aus dem ermittelten Wert von 0.73 meV ergibt sich ein Q-Faktor von 3845, welcher geringfügig größer ist als der maximale durch PL-Messungen an den Säulenresonatoren bestimmte Wert.

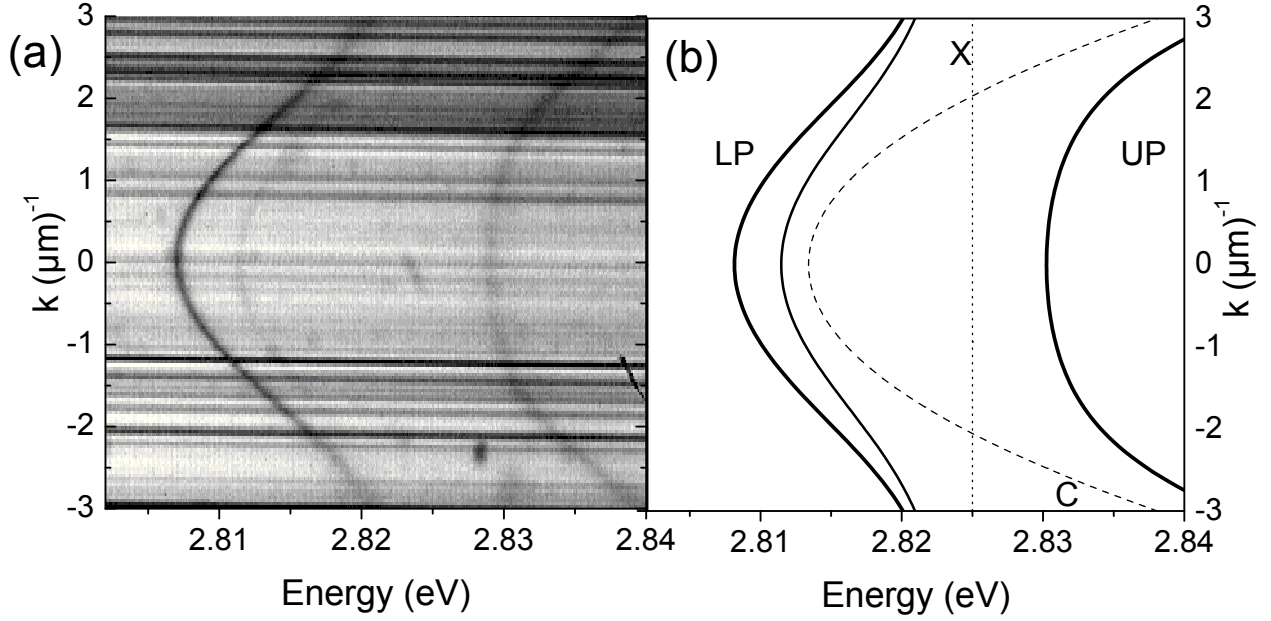


Abbildung 5.10: (a) Gemessene μ -Reflexion der planaren Probe in Abhängigkeit von Energie und Wellenvektor k ($T = 4$ K). (b) Berechnete Dispersionsrelationen von unterem (LP) und oberem Polariton (UP), Exziton (X) und Kavitätsphoton (C) für denselben spektralen Bereich wie in (a).

In Abbildung 5.10 (b) sind zum Vergleich die berechneten Dispersionsrelationen des unteren und oberen Polaritons sowie des Exzitons (X) und des Kavitätsphotons (C) aufgetragen. Die Berechnungen basieren auf einem Zwei-Oszillator-Modell (siehe Abschnitt 2.4.1) mit einer Rabi-Aufspaltung von 21 meV. Diese Rabi-Aufspaltung ergibt sich aus der an einer Referenzprobe ohne Kavität bestimmten Exzitonenergie der ZnSe-Quantenfilme von 2.825 eV ($T = 4$ K, in Übereinstimmung mit [271]) und der spektral angepassten Position des Kavitätsphotons für $k = 0$ von 2.813 eV. Aus den Energien des Exzitons und des Kavitätsphotons ergibt sich eine negative Verstimmung der Probe von $\delta = -11$ meV. Insgesamt können die berechneten Dispersionsrelationen der beiden Polaritonenzweige die Messung sehr gut reproduzieren. Nimmt man für die Dicke der Kavitätsabstandsschicht einen um 0.27 nm größeren Wert an, so erhält man die in Abbildung 5.10 (b) dünner dargestellte Linie spektral oberhalb des unteren Polaritons. Diese Linie besitzt den Verlauf der um 4 meV oberhalb des unteren Polaritons liegenden Dispersionsrelation aus der Messung. Somit wird vermutlich innerhalb des Spots der μ -Reflexionsmessung über zwei Bereiche mit leicht unterschiedlicher Dicke der Kavitätsabstandsschicht gemittelt, und beide Dispersionsrelationen zeigen sich im Spektrum. Das Fehlen des oberen Polaritons für den geringfügig dickeren Probenbereich liegt vermutlich in der zu geringen Intensität begründet, welche bei den gewählten Integrationszeiten das obere Polariton nicht mehr darzustellen vermag.

Um die Besetzung des unteren und oberen Polaritonenzweiges zu untersuchen, wurde in winkelaufgelösten Messungen die Intensitätsverteilung in Abhängigkeit von Energie und Wellenvektor bestimmt. Die Anregung der Probe erfolgte erneut nicht-resonant mit einer Photonenenergie von 2.99 eV und einer Pulslänge von etwa 100 fs (Wiederholrate 94 MHz). In Abbildung 5.11 ist die farbcodierte Intensitätsverteilung im Bereich des unteren und oberen Polaritons für zwei unterschiedliche Pulsenergien aufgetragen. Für beide Pulsenergien ist

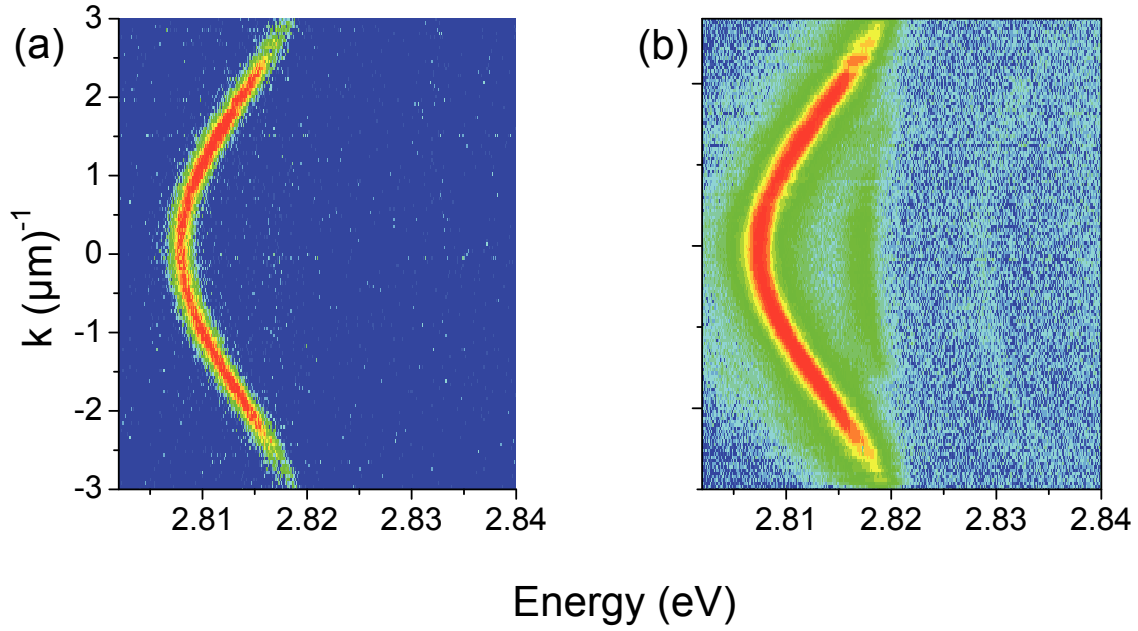


Abbildung 5.11: *PL-Intensität im Bereich der Polaritonen in Abhängigkeit von Energie und Wellenvektor für eine Anregungsdichte von $P = P_0$ (a) und $P = 12 \cdot P_0$ (b). Die Darstellung ist farbcodiert mit Rot als höchster und Blau als geringster Intensität.*

die Dispersionsrelation des unteren Polaritons deutlich als symmetrisch um $k = 0$ zentrierte Intensitätsverteilung sichtbar. Es sind keine Hinweise auf eine erhöhte Ansammlung von Polaritonen bei höheren k -Zuständen zu erkennen (kein bottleneck-Effekt). Dies deutet auf eine effiziente Polaritonenstreuung von den höheren, durch die nicht-resonante Anregung besetzten Zuständen mit $k \neq 0$ in den Grundzustand bei $k = 0$ hin. Für den Q-Faktor lässt sich aus der spektralen Breite von 1.5 meV bei der Anregungsdichte von $P_0 = 0.2$ pJ aus Teilbild (a) ein Wert von 1900 ermitteln. Die Reduzierung des Q-Faktors auf etwa die Hälfte des aus der Reflexion bestimmten Wertes wird vermutlich durch Absorptionsprozesse verursacht.

Mit zunehmender Anregungsdichte verringert sich die spektrale Breite der Dispersionsrelation des unteren Polaritons an dessen Grundzustand, bis bei der in Abbildung 5.11 (b) gezeigten Pulsenergie von $P = 12 \cdot P_0$ die spektrale Breite für $k = 0$ und damit auch der Q-Faktor vergleichbar zu dem aus der Reflexion bestimmten Wert von 3845 wird. Diese Abnahme der spektralen Breite der Dispersionsrelation der Polaritonen für deren Grundzustand mit zunehmender Pulsenergie ist für CdTe-Quantenfilme bekannt [18, O4]. Die aus der Literatur bekannte Blauverschiebung der Emission, welche vermutlich durch eine Sättigung der Oszillatorstärke durch das Auffüllen der Bänder verursacht wird, konnte jedoch nicht beobachtet werden. Die Ursache hierfür könnte eine mit zunehmender Pulsenergie einhergehende Erwärmung der Probe sein. Die aus der Erwärmung resultierende Rotverschiebung könnte die Blauverschiebung gerade kompensieren.

Bei der Anregung mit einer höheren Pulsenergie in Teilbild (b) ist neben dem unteren Polariton noch die Dispersionsrelation des oberen Polaritons als schwach ausgeprägte Linie bei $E(k=0) = 2.829$ eV zu erkennen. Zusätzlich zu den Dispersionsrelationen der beiden Polaritonen ist bei einer Energie von $E(k=0) = 2.817$ eV eine weitere schwache Linie zu erkennen, welche aufgrund der spektralen Lage und dem Verlauf der Dispersionsrelation

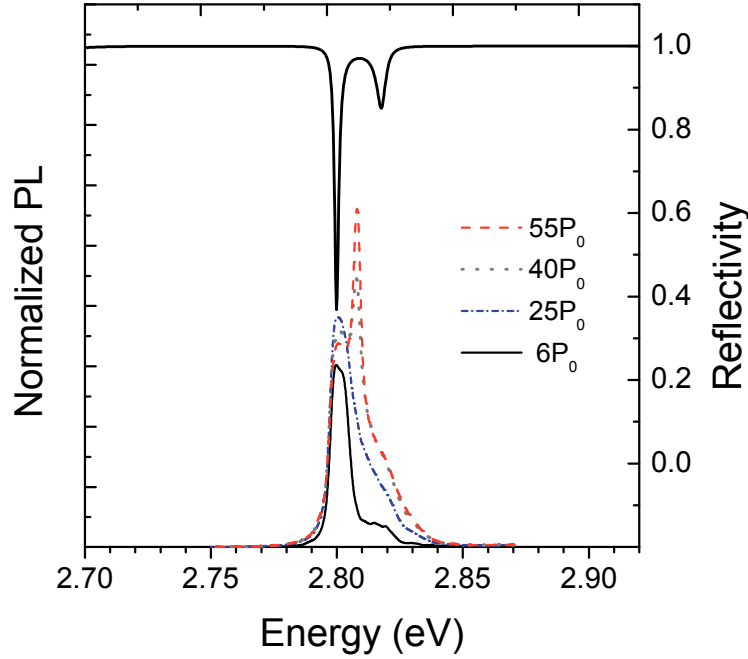


Abbildung 5.12: PL-Spektren für verschiedene Pulsenergien im Vergleich zur berechneten Reflektivität.

dem Kavitätsphoton zugeordnet werden kann. Der Grund für die gleichzeitige Detektion von Phänomenen der starken Kopplung (Polaritonendispersion) wie auch der schwachen Kopplung (Kavitätsphoton) ist vermutlich in der zeitintegrierten Detektion bei hohen Pulsenergien zu suchen. Die hohe Anregungsdichte zu Beginn des Laserpulses führt zu einer hohen Ladungsträger- und Polaritonendichte, durch welche die starke Kopplung aufbricht. Nach der kurzzeitigen Anregung durch den Laserpuls reduzieren sich diese Dichten durch Rekombinationsprozesse soweit, dass das System wieder in den Bereich der starken Kopplung übergeht. Aufgrund der zeitintegrierten Messungen sind in den PL-Spektren die Charakteristika beider Regime sichtbar.

In Abbildung 5.12 sind die über die k -Verteilung gemittelten Spektren einer PL-Messung für vier verschiedene Pulsenergien aufgetragen und der berechneten Reflexion aus Abbildung 5.9 gegenüber gestellt. Dabei wurden die Spektren auf die Pulsenergie normiert, d.h. eine Zunahme der Intensität der normierten Spektren ist gleichbedeutend mit einem überlinearen Anstieg der PL-Intensität mit der Pulsenergie. Für kleine Pulsenergien zeigen die Messungen einen überlinearen Zunahme der Intensität an der spektralen Position des unteren Polaritons, verbunden mit einer spektralen Verbreiterung der Emission zu höheren Energien. Aus dieser Verbreiterung entwickelt sich bei einer weiteren Erhöhung der Pulsenergie an der spektralen Position des Kavitätsphotons ein zweites Maximum, welches ab einer Pulsenergie von $E = 40 \cdot P_0$ dominiert und bei zunehmender Pulsenergie ebenfalls einen überlinearen Anstieg zeigt. Die Emission an der spektralen Lage des Kavitätsphotons kann erneut durch das Aufbrechen der starken Kopplung und das Einsetzen einer stimulierten photonischen Emission im Bereich der schwachen Kopplung erklärt werden. Gleichzeitig zum Anstieg der Intensität der photonischen Emission reduziert sich die Intensität des unteren Polaritons, bis dieses bei einer Pulsenergie von $E = 55 \cdot P_0$ nur noch als schwache Schulter auf der photonischen Emission auszumachen ist.

Damit wurden in diesem Abschnitt einerseits Messungen präsentiert, welche sich komplett im Bereich der schwachen Kopplung befinden und keinerlei Anzeichen einer polaritonischen Emission aufweisen (Abbildung 5.7). Andererseits wurden auf der selben Probe ebenfalls Experimente demonstriert, welche durch die Polaritonenemission eindeutig im Regime der starken Kopplung statt fanden (Abbildungen 5.11-5.12).

Vermutlich liegt das nur lokale Erreichen der starken Kopplung an einer großen Variation in der Probenqualität, welche sich auch in den starken Unterschieden der Q-Faktoren in Abbildung 5.6 (b) zeigt. Da für das Erreichen der starken Kopplung der Ausdruck $Q\sqrt{f/V_m}$ optimiert werden muss (f Oszillatorstärke, V_m Modenvolumen, siehe Abschnitt 2.4.2), wird vermutlich in den Probenbereichen mit einem hohen Q-Faktor die starke Kopplung erreicht, während Bereiche mit einem geringeren Q-Faktor im Regime der schwachen Kopplung sind.

Die hier präsentierten Ergebnisse zeigen den Vorteil der spektral scharfen Emission der binären ZnSe-Quantenfilme, mit welchen sich bereits mit drei Quantenfilmen der Bereich der starken Kopplung erreichen lässt, während für Mikrokavitäten mit quaternären ZnCdSSe-Quantenfilmen 16 Quantenfilme verwendet wurden, um die starke Kopplung nachzuweisen [O4]. Trotz des überlinearen Anstiegs der Emission aus dem unteren Polaritonenzweig mit zunehmender Pulsenergie konnten keine Hinweise auf ein polaritonisches Lasing gefunden werden. Offenbar ist die Polaritonendichte nicht hoch genug, um durch Polariton-Polariton-Streuung den Grundzustand stärker zu besetzen, als sich dieser durch den Polaritonenzerfall entleert. Durch eine stärkere Anregung werden zwar mehr Polaritonen erzeugt, doch bricht die starke Kopplung auf, bevor die Polaritonendichte hoch genug für das Einsetzen von polaritonischem Lasing ist. Da jedoch die Polaritonendichte mit der Anzahl der Quantenfilme skaliert, kann durch ein oder zwei zusätzliche Quantenfilme die Polaritonenanzahl eventuell in einem für das Einsetzen von polaritonischem Lasing ausreichenden Maße erhöht werden.

5.3 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurden erstmalig monolithisch hergestellte VCSEL mit ZnSe-Quantenfilmen präsentiert. Für die unter Raster- und Transmissionselektronenmikroskopie nahezu defektfreie Probe konnte durch die optische Charakterisierung von Säulenresonatoren ein Q-Faktor von 3450 bestimmt werden. Durch anregungsdichteabhängige PL-Messungen wurde ab einem Schwellwert von 5 pJ eine deutlich Verschmälerung des Spektrums in Kombination mit einem überlinearen Anstieg der Intensität ermittelt, welche auf das Einsetzen von stimulierter Emission zurückgeführt wurde.

An weiteren Probenbereichen wurde erstmalig das Erreichen des Bereichs der starken Kopplung für monolithische ZnSe-Quantenfilm-VCSEL demonstriert. Die Dispersionsrelationen des unteren und oberen Polaritons wurden sowohl in Reflexion wie auch in Photolumineszenz nachgewiesen. Die dabei ermittelte Rabi-Aufspaltung von 19 meV konnte durch Simulationen bestätigt werden und zeigt das große Potential der spektral scharfen Emission der ZnSe-Quantenfilme. Durch eine Erhöhung der Pulsenergie konnte ein überlinearer Anstieg der polaritonischen Emission gezeigt werden. Vor Erreichen der Laserschwelle des polaritonischen Lasings brach jedoch die starke Kopplung zusammen und das System ging unter Einsetzen von photonischem Lasing in den Bereich der schwachen Kopplung über.

Insgesamt demonstrieren die hier gezeigten Ergebnisse das Potential von monolithischen Kavitäten in Kombination mit der spektral scharfen Emission aus ZnSe-Quantenfilmen. Insbesondere der Nachweis eines überlinearen Anstiegs der Polaritonenemission ist sehr viel versprechend, um mit ein oder zwei weiteren Quantenfilmen polaritonisches Lasing zu erreichen.

6 Polarisierte Emission aus Mikrokavitäten

Für viele Aspekte der Quanteninformationsverarbeitung und -kryptographie sind effiziente Einzelphotonenquellen wünschenswert, welche Photonen mit einem definierten Polarisationsgrad emittieren [123]. Wie in Abschnitt 2.3 beschrieben, besteht die fundamentale Kavitätsmode zirkularer Säulenresonatoren aus zwei orthogonal zueinander polarisierten Komponenten identischer Energie. Eine bekannte Möglichkeit diese Polarisationsentartung aufzuheben, besteht in der Verwendung von Säulenresonatoren mit asymmetrischen Querschnitten, von welchen elliptische Säulenresonatoren am bekanntesten sind [21]. Da die Effizienz der Auskopplung aus einem Mikroresonator wesentlich von der Ankopplung an eine dieser polarisierten Resonatormoden bestimmt wird, lassen sich durch elliptische Säulenresonatoren mit Quantenpunkten polarisierte Einzelphotonenquellen realisieren [106]. Ist die spektrale Halbwertsbreite eines Quantenfilms oder Quantenpunktensembles kleiner als die Aufspaltung der orthogonal polarisierten Moden, lässt sich auf diese Weise auch eine polarisierte Lasertätigkeit erreichen.

Die bisherigen Arbeiten wurden ausschließlich auf GaAs-basierten Proben durchgeführt. Wegen der guten Temperaturstabilität der exzitonischen Emission von CdSe-Quantenpunkten mit nachgewiesener Einzelphotonenemission bei erhöhten Temperaturen bis hin zu Raumtemperatur [60, 108, 109] bieten sich diese perspektivisch für eine polarisierte, bei Raumtemperatur betriebene Einzelphotonenquelle an und sind daher Bestandteil dieses Kapitels.

In diesem Kapitel sollen zuerst Quantenpunkt-Mikrokavitäten untersucht werden, welche trotz ihres nominell zirkularen Querschnitts eine Polarisationsaufspaltung der Fundamentalmode zeigen und die Ursache der Aufspaltung geklärt werden.

Im zweiten Abschnitt werden dann elliptische Säulenresonatoren als eine weitere Möglichkeit zur Erzeugung einer polarisierten Emission dargestellt. Dabei wird die Abhängigkeit der Modenaufspaltung von der Elliptizität untersucht, und die Effektivität elliptischer Mikroresonatoren hinsichtlich einer polarisierten Emission ermittelt. Zum besseren Verständnis der physikalischen Effekte geschieht dies zuerst an Quantenfilmproben, welche keine intrinsische Aufspaltung zeigen. Anschließend werden die Ergebnisse unter Berücksichtigung der intrinsischen Aufspaltung auf eine Quantenpunktprobe angewendet und die polarisierte Emission aus einem einzelnen Quantenpunkt präsentiert.

6.1 Verspannte zirkulare Mikrokavitäten

In diesem Abschnitt soll die erstmals von *Dr. Joachim Kalden* beobachtete Aufhebung der Polarisationsentartung an zirkularen Quantenpunkt-Säulenresonatoren systematisch untersucht werden. Dazu werden zuerst die Moden der Säulenresonatoren und deren Aufspaltung in orthogonale Polarisationszustände mit Hilfe von polarisationsabhängigen Photolumineszenzuntersuchungen charakterisiert und eine Abhängigkeit der Aufspaltung vom Durchmesser hergestellt. Eine Reduzierung der Aufspaltung nach einem Ausheizen der Proben lässt eine interne Verspannung als mögliche Ursache für die Aufhebung der Entartung plausibel erscheinen.

Abschließend werden erste Ergebnisse zur polarisierten Emission aus CdSe-Quantenpunkten vorgestellt.

Die verwendeten Proben bestehen aus einer einzelnen, von MgS-Barrieren umgebenen CdSe/ZnSSe-Quantenpunktschicht, welche als aktive Schicht in eine Mikrokavität eingebettet wurde (siehe Abschnitt 4.1.1). Durch FIB-Strukturierung wurden Säulenresonatoren mit kreisförmigem Durchmesser im Bereich von $1.39\text{ }\mu\text{m}$ bis $4\text{ }\mu\text{m}$ aus der planaren Probe präpariert. Der Versuchsaufbau besteht aus einem μPL -Messplatz, bei welchem in den Nachweisstrahlengang ein in 1° -Schritten verstellbarer Polfilter sowie eine $\lambda/2$ -Verzögerungsplatte eingesetzt werden (siehe 4.3). Die Verzögerungsplatte wird so eingestellt, dass die vom Polarisator transmittierte Polarisationsrichtung des Lichts stets parallel zum Eintrittsspalt des Spektrometers gedreht wird. Dadurch werden eventuelle verfälschende Einflüsse durch eine Vorzugsrichtung des Gitters innerhalb des Spektrometers auf die Messergebnisse von vornherein ausgeschlossen. Die Anregung erfolgte im Dauerstrichbetrieb eines Ar^+ -Ionenlasers mit einer Photonenenergie von 2.71 eV .

6.1.1 Modencharakteristika verspannter zirkularer Mikrokavitäten

Zur gezielten Untersuchung von Kopplungsphänomenen zwischen der Emission von Quantenpunkten und dem optischen Feld von Mikrokavitäten wird in der Regel die Anzahl der beteiligten Quantenpunkte durch eine Abstimmung der Kavitätsresonanz auf die niederenergetische Flanke des Quantenpunktensembles reduziert. Dieses Vorgehen hat zudem den Vorteil, dass durch eine Temperaturerhöhung der spektrale Abstand zwischen Kavitätsresonanz und dem Maximum des Quantenpunktensembles verkleinert werden kann, wodurch sich die Anzahl der in die Moden koppelnden Quantenpunkte erhöhen lässt. Voruntersuchungen an unstrukturierten Referenzproben ohne Kavität ergaben für $T = 4\text{ K}$ näherungsweise eine spektrale Gaußverteilung der Photolumineszenz des Quantenpunktensembles, zentriert bei 2.50 eV mit einer vollen Breite bei halber Intensität (FWHM) von 50 meV [64]. Als niederenergetische Lage der Kavitätsresonanz bei tiefen Temperaturen wurde daher eine Position von etwa 2.20 eV angestrebt.

In Abbildung 6.1 (a) ist das unpolarisiert aufgenommene μPL -Spektrum eines zirkularen Säulenresonators mit einem Durchmesser von $d = 3.96\text{ }\mu\text{m}$ gezeigt. Aufgrund des vorrangigen Interesses an der Modenstruktur und nicht an der Quantenpunkt-Lumineszenz wurde die Messung bei einer Temperatur von $T = 80\text{ K}$ durchgeführt, bei welcher die Emission der Quantenpunkte die Modenstruktur ausleuchtet, selbst jedoch nicht mehr als spektral scharfe Linien in Erscheinung treten. Die fundamentale Mode (FM) sowie viele der höheren Moden weisen zwei spektral nah beieinander liegende Maxima auf. Der spektrale Bereich um die Fundamentalmode ist in Abbildung 6.1 (b) für drei Einstellungen des Polarisators, symbolisch gekennzeichnet durch die Ausrichtung der Pfeile, vergrößert dargestellt. Für das obere Spektrum wurde der Polarisator derart justiert, dass die bei 2.2199 eV liegende höherenergetischere Komponente der fundamentalen Mode ihre maximale Intensität erreicht. Das untere Spektrum entspricht einer Einstellung des Polarisators orthogonal zur ersten. Während diese beiden Spektren aus einer einzigen Mode mit Q-Faktoren von jeweils etwa 6530 bestehen, überlagern sich bei jeder weiteren Polarisatoreinstellung (mittleres Spektrum) die beiden Einzelspektren zu einem Gesamtspektrum mit einer Aufspaltung von $\Delta E = 440\text{ }\mu\text{eV}$ zwischen den beiden Maxima. Eine Anpassung der Messpunkte durch Lorentzkurven verdeutlicht diesen Sachverhalt: Im Fall der mittleren Polarisatoreinstellung lässt sich die angepasste Messkurve gut durch die Überlagerung der beiden einzelnen Lorentzkurven der oberen bzw.

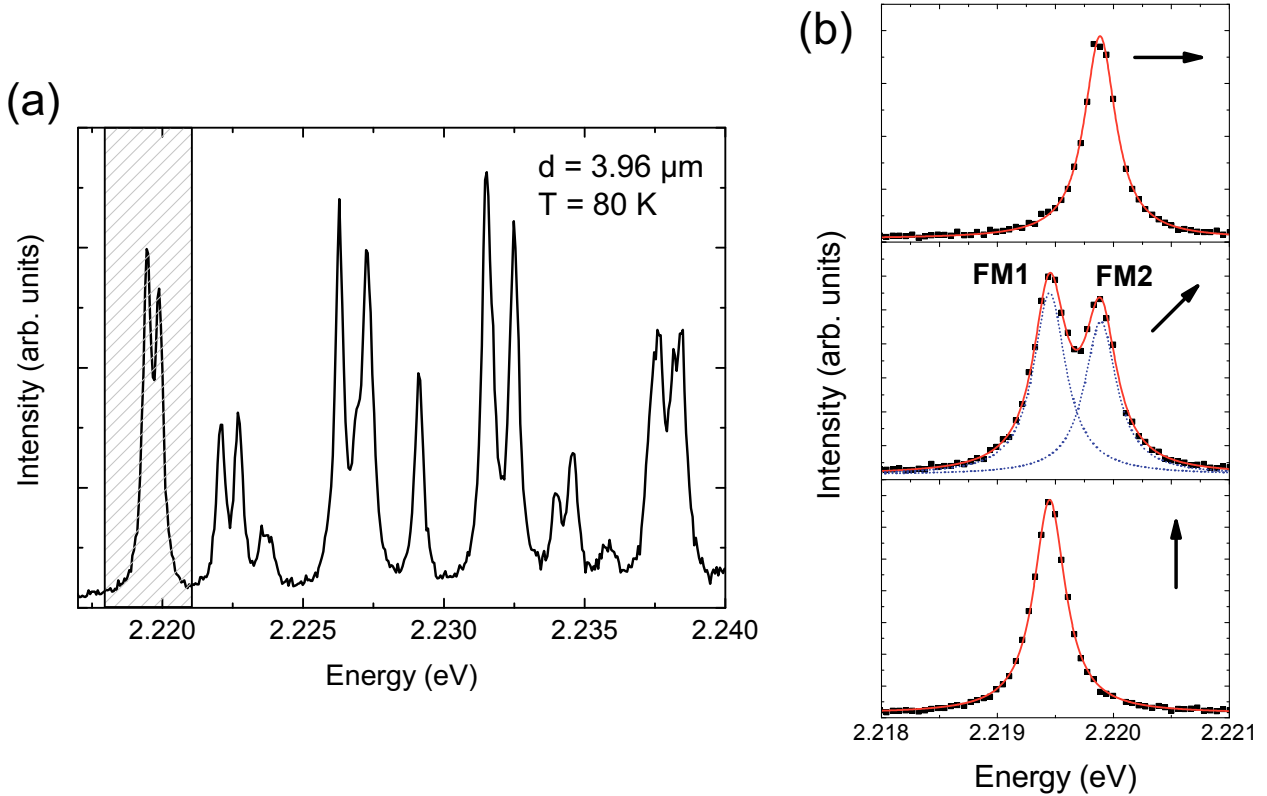


Abbildung 6.1: (a) Ohne Polfilter aufgenommenes PL-Spektrum eines runden Säulenresonators mit eingebetteten Quantenpunkten und einem Durchmesser von $d = 3.96 \mu\text{m}$. (b) Polarisiert gemessene, vergrößerte Darstellung des markierten Bereichs aus dem Teilbild (a). Die durchgezogenen Linien stellen an die Messdaten (Quadrate) angepasste Lorentzkurven dar. Die Richtung des Pfeils gibt die Einstellung des Polarisators im Nachweis wieder. Alle Messungen wurden bei $T = 80 \text{ K}$ aufgenommen.

unteren Messung (gestrichelte Linien) reproduzieren.

Trägt man die Intensitäten der beiden Anteile der fundamentalen Mode in Abhängigkeit von der Polarisatoreinstellung auf, so erhält man den in Abbildung 6.2 (a) dargestellten Verlauf. Die Kreise stellen dabei die Intensität der Komponente der fundamentalen Mode bei 2.2194 eV (FM1) dar, die Quadrate entsprechend die Intensität der Komponente der fundamentalen Mode bei 2.2199 eV (FM2). Zur Korrektur eventueller Schwankungen in der Ausgangsleistung des Lasers wurde eine konstante Gesamtintensität beider Polarisationskomponenten angenommen und die Intensitäten der beiden Moden entsprechend normiert. Zudem wurde ein konstanter, durch die niederenergetische Flanke des Quantenpunktensembles bedingter Hintergrund bei beiden Moden abgezogen. Die Abhängigkeit der PL-Intensität von Mode FM1 lässt sich in guter Übereinstimmung mit dem typischen räumlichen Abstrahlverhalten eines elektromagnetischen Dipols von

$$I(\Phi) = I_0 \cdot \cos^2(\Phi) \quad (6.1)$$

reproduzieren (durchgezogene Linie), wobei der Winkel Φ die Einstellung des Polarisators angibt [79]. Für die Anpassung an die Messdaten wurde nur die Intensität I_0 als einziger

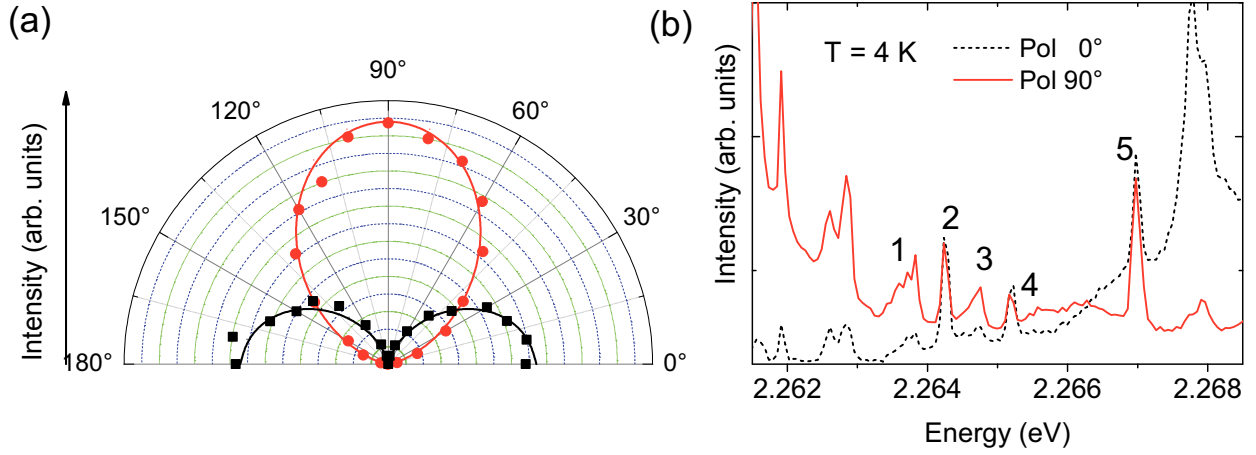


Abbildung 6.2: (a) Intensität von FM1 (Kreise) und FM2 (Quadrate) aus Abbildung 6.1 für die jeweilige Polarisatoreinstellung (Messpunkte) verglichen mit der theoretisch nach Formel 6.1 erwarteten winkelabhängigen Intensität eines schwingenden Dipols (durchgezogene Linien). $T = 80\text{ K}$. (b) PL-Spektren zweier orthogonal zueinander polarisierter Moden mit den Emissionslinien mehrerer Quantenpunkte. Je nach spektraler Lage koppeln die Quantenpunkte bevorzugt an die 0° bzw. 90° polarisierte Mode und emittieren dementsprechend polarisiert. Die Messung erfolgte bei $T = 4\text{ K}$.

freier Parameter variiert. Entsprechendes gilt für die Messdaten der höherenergetischeren Mode bei 2.2199 eV mit einem $\sin^2(\Phi)$ -Verlauf.

Die unterschiedlichen maximalen Intensitäten der beiden Polarisationsrichtungen liegen vermutlich in den Quantenpunkten selbst begründet. Oftmals weisen Quantenpunkte eine längliche Form entlang einer bestimmten kristallographischen Achse auf. Diese asymmetrische Form führt wiederum zu einer teilweise polarisierten Emission aus den Quantenpunkten [152, 272]. Da die Probe entlang kristallographischer Vorzugsrichtungen im Kryostaten eingebaut ist, entsprechen die Polarisatoreinstellungen von 0° bzw. 90° ebenfalls kristallographischen Vorzugsrichtungen, womit sich eine polarisierte Emission aus den Quantenpunkten direkt in einer unterschiedlichen Intensität für die beiden orthogonalen Polarisatoreinstellung auswirkt. Betrachtet man die polarisiert gemessenen PL-Spektren der Quantenpunkte 1-5 in Abbildung 6.2 (b), so lässt sich diese Vermutung bestätigen. Die Quantenpunkte 1 und 3 emittieren hauptsächlich 90° polarisierte Photonen, obwohl sie nur einem sehr schwachen Einfluss einer Mode unterliegen. Der Quantenpunkt 5 liegt spektral bereits im Bereich einer 0° polarisierten Mode, dennoch weisen die emittierten Photonen die gleiche Intensität für beide Polarisationsrichtungen auf. Mit den unpolarisiert emittierenden Quantenpunkten 2 und 4 ergibt sich insgesamt eine stärkere Emission von unter 90° polarisierten Photonen, was zu den unterschiedlichen maximalen Intensitäten in Abbildung 6.2 (a) führt. Die Schwankungen der Messwerte um die theoretisch erwartete Kurve sind teilweise auf den spektralen Überlapp der beiden Moden zurückzuführen, welcher bei einer Anpassung durch zwei Lorentzkurven zu einem erhöhten Fehler führt.

Betrachtet man die relativen PL-Intensitäten, gemessen in den beiden Polarisationsrichtungen für die spektrale Position der fundamentalen Mode FM1, so ergibt sich daraus ein Polarisationsgrad von $P = (I_{90^\circ} - I_{0^\circ}) / (I_{90^\circ} + I_{0^\circ}) = 82\%$ [217].

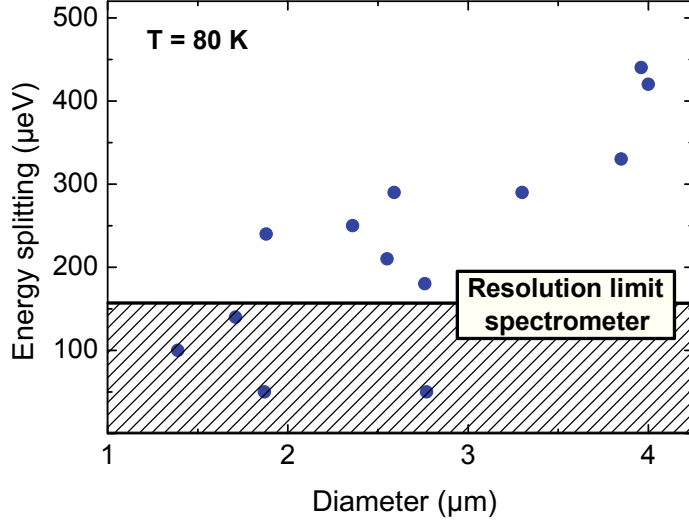


Abbildung 6.3: Abhängigkeit der Aufspaltung der FM vom Durchmesser der untersuchten zirkularen Säulenresonatoren. Das spektrale Auflösungsvermögen des Spektrometers ist als horizontale Linie eingezeichnet. Der Bereich unterhalb des Auflösungsvermögens ist grau schraffiert um die reduzierte Aussagekraft dieser Messwerte zu verdeutlichen. Die Messungen erfolgten bei $T = 80\text{ K}$.

Um die Abhängigkeit der Modenaufspaltung vom Durchmesser der Säulenresonatoren zu untersuchen, wurden Mikroresonatoren mit Durchmessern im Bereich von $1.39\text{ }\mu\text{m}$ bis $4\text{ }\mu\text{m}$ hergestellt. Alle Säulenresonatoren weisen innerhalb des Auflösungsvermögens des REM von $\pm 10\text{ nm}$ einen zirkularen Querschnitt auf. In Abbildung 6.3 ist die Energieaufspaltung der beiden Polarisationskomponenten der Fundamentalmoden für eine Temperatur von $T = 80\text{ K}$ gegen den jeweiligen Säulendurchmesser aufgetragen. Das Auflösungsvermögen des Spektrometers von etwa $160\text{ }\mu\text{eV}$ ist als schwarzer Trennstrich eingezeichnet, der Bereich unterhalb des Auflösungsvermögens ist aufgrund der reduzierten Aussagekraft schraffiert. Für Messpunkte mit einer spektralen Aufspaltung unterhalb des Auflösungsvermögens lassen sich keine zwei Maxima in einem einzigen Spektrum mehr erkennen, die Aufspaltung wurde daher über eine Verschiebung des Maximums der angepassten Lorentzkurven ermittelt.

Alle untersuchten Säulenresonatoren zeigen eine Aufspaltung zwischen den beiden orthogonalen Polarisationsrichtungen. Dabei ist trotz einer recht großen Schwankung der Messwerte ein Trend zu einer größeren Aufspaltung mit zunehmendem Säulendurchmesser erkennbar. Die größte ermittelte Aufspaltung wurde für einen Säulenresonator mit einem Durchmesser von $d = 3.96\text{ }\mu\text{m}$ erreicht und beträgt $440\text{ }\mu\text{eV}$, das entsprechende PL-Spektrum ist in Abbildung 6.1 dargestellt.

Durch die polarisationsaufgelösten Messungen konnten Q-Faktoren von bis zu 7880 erreicht werden, was die sehr hohe Qualität der in Bremen hergestellten II-VI-Mikrokavitäten zeigt. Erst diese hohe Güte ermöglicht die Detektion der geringen spektralen Aufspaltungen der Moden im Bereich von weniger als hundert Mikroelektronenvolt.

Vom GaAs-Materialsystem ist eine solche Aufspaltung der fundamentalen Mode in unterschiedlich polarisierte Komponenten bereits bekannt. Als Ursache wurde jedoch meist ein leicht elliptischer Querschnitt der Säulenresonatoren diskutiert [21, 22, 216, 217, 273, 274]. Die sich daraus ergebende energetische Modenaufspaltung $\Delta E_{0^\circ, 90^\circ}$ der orthogonal zueinander polarisierten Moden einer Ellipse mit dem Längenunterschied Δr_c der beiden Achsen lässt sich nach dem von *Reitzenstein et al.* beschriebenen Zusammenhang [175]

$$\Delta E_{0^\circ, 90^\circ} = \frac{1}{E_{\text{circ}} r_c^3} \cdot \frac{\hbar^2 c^2}{\epsilon_r} x_{0,1}^2 \Delta r_c \quad (6.2)$$

ermitteln. Hierbei gehen die spektrale Position E_{circ} eines vergleichbaren runden Säulenresonators mit dem Radius r_c sowie die erste Nullstelle $x_{0,1}^2$ der Besselfunktion

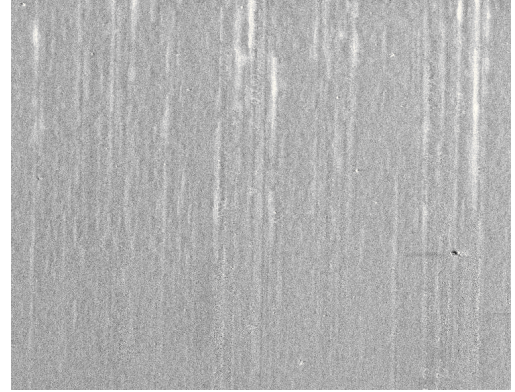


Abbildung 6.4: REM-Aufnahme der planaren Probenoberfläche mit charakteristischen Liniendefekten entlang einer kristallographischen Vorzugsrichtung.

$J_0(x_{0,1}^2 r/r_c)$ in die Berechnung ein.

Berechnet man die zur Aufspaltung der Moden von 440 μeV korrespondierende Elliptizität für den Säulenresonator aus Abbildung 6.1, so ergibt sich ein Längenunterschied der beiden Achsen von 240 nm. Dieser Wert liegt deutlich oberhalb des Auflösungsvermögens des Elektronenmikroskops und wäre somit nachweisbar. Eine unbeabsichtigte, herstellungsbedingte Elliptizität als Ursache der Modenaufspaltung würde zudem mit zunehmendem Durchmesser der Strukturen abnehmen [175], was im Gegensatz zu den Beobachtungen aus Abbildung 6.1 steht. Weiterhin ist die Aufhebung der Polarisationsentartung in diesem Umfang nur für Quantenpunktproben, nicht jedoch für Proben mit Quantenfilmen als aktiver Schicht zu beobachten. All diese Beobachtungen weisen auf eine intrinsische, also in der Probe selbst begründete Ursache für die Modenaufspaltung und nicht auf eine prozessierungsbedingte Ursache hin.

Erste Belege für die Vermutung einer intrinsischen Ursache der Modenaufspaltung liefern REM Bilder der Probenoberfläche, auf welchen Liniendefekte entlang einer kristallographischen Vorzugsrichtung zu erkennen sind (siehe Abbildung 6.4). Diese Liniendefekte deuten auf eine Verspannung innerhalb der Probe in einer definierten Richtung hin. Diese Verspannungen können ihrerseits wieder zu einem richtungsabhängigen Brechungsindex führen. Als Ursache für die Verspannungen kommen die CdSe-Quantenpunkte selbst in Betracht, welche für eine asymmetrische Form bekannt sind [152]. Diese könnte zu einer Verspannung innerhalb des Kristalls und zu unterschiedlichen Brechungsindizes entlang seiner Hauptachsen führen. Bei der Strukturierung der planaren Probe in Säulenresonatoren ist anzunehmen, dass sich die Verspannungen teilweise abbauen können. Dabei wäre die Relaxation vom Durchmesser abhängig und für kleinere Durchmesser größer. Genau dieses Verhalten spiegeln die experimentellen Befunde aus Abbildung 6.2 (b) wider, welche somit die Vermutung der internen Verspannungen als Ursache der Modenaufspaltung unterstützen. Eine einfache quantitative Abschätzung soll Aufschluss darüber geben, ob eine verspannungsinduzierte Brechungsindexänderung die gemessene Modenaufspaltung von bis zu 440 μeV verursachen kann. Hierzu wird aus der Modenaufspaltung des Säulenresonators mit dem größten Durchmesser (Abbildung 6.1) eine mögliche Verspannung in der planaren Probe abgeschätzt. Im Fall einer vollständigen Relaxation der Verspannung bei der Strukturierung der Säulenresonatoren mit den kleinsten Durchmessern würde diese Verspannung eine Längenänderung in einer Richtung bewirken, welche je nach Größe nachweisbar sein sollte. Da die Quantenpunkte als Grund für Verspannungen in Betracht kommen, wird bei den folgenden Betrachtungen von einem Ursprung der Verspannungen in der Kavitätsabstandsschicht und nicht in den DBRs ausgegangen. Aufgrund der Dispersion des Brechungsindex besitzen die

beiden spektral getrennten Moden FM1 und FM2 einen leicht unterschiedlichen Wert für den Brechungsindex. Aus Literaturwerten des Brechungsindex von ZnSSe als Hauptbestandteil der Kavitätsabstandsschicht lässt sich den beiden spektralen Positionen der Moden FM1 und FM2 jeweils ein Brechungsindex zuordnen. Für einen spektralen Abstand der Moden von $E_{0^\circ,90^\circ} = 440 \mu\text{eV}$ ergibt sich ein Brechungsindexunterschied der beiden Komponenten von $\Delta n = 0.0002$ [76]. Nimmt man eine Verspannung in einer kristallographischen Richtung als Ursache dieses Brechungsindexunterschiedes an, so lässt sich für die Verspannung nach [275] einen Wert von etwa 80 kPa bestimmen. Eine Berechnung der Längenänderung bei einer vollständigen Relaxation dieser Verspannungen kann mit dem bekannten Elastizitätsmodul für ZnSSe geschehen [27]. Für den hier erhaltenen Wert von 80 kPa ergibt sich eine relative Längenänderung von einer Achse des Säulenresonators von 0.4 %. Bei einem angenommenen Durchmesser der kleinen Säulenresonatoren von einem Mikrometer entspricht dies lediglich einem Längenunterschied von 4 nm. Ein solch geringer Längenunterschied ist mit dem REM nicht nachweisbar.

Vom Wachstum epitaktischer Strukturen ist bekannt, dass sich interne kristalline Verspannungen in einer Probe durch Tempern reduzieren lassen. Im Fall der verspannten Quantenpunkt-Proben sollte ein Ausheizen folglich die Aufhebung der Polarisationsentartung der Moden verringern. Aus diesem Grund wurde die Probe für 10 min bei 200 °C ausgeheizt. Zur Vermeidung einer Degradation, welche hauptsächlich durch eine Oxidation der Mg-Schichten zu erwarten ist, wurde das Ausheizen unter Stickstoff-Atmosphäre durchgeführt. In anschließenden PL-Untersuchungen konnte eine geringfügige Reduzierung der Modenaufspaltung für fast alle Säulenresonatoren nachgewiesen werden, wobei die Reduzierung vom Durchmesser der Säulen abhängt und für kleinere Durchmesser ausgeprägter ist. Dieses Verhalten lässt sich mit dem kleineren Säulenvolumen bei kleineren Säulendurchmessern erklären, welches Verspannungen schneller abbauen kann.

6.2 Elliptische Mikrokavitäten

Die im letzten Abschnitt untersuchte Polarisationsaufspaltung der fundamentalen Mode resultiert vermutlich aus der induzierten Verspannung während des Wachstums, und ist damit nicht gut reproduzierbar. Zudem ist die maximal erreichte Aufspaltung von 440 μeV für den technischen Einsatz zu gering. Daher soll in diesem Abschnitt die gezielte Aufhebung der Polarisationsentartung durch asymmetrische Säulenresonatoren untersucht werden, wie sie erstmals von *B. Gayral et al.* für GaAs-basierte Säulenresonatoren gezeigt wurde [21] (siehe Kapitel 3.2.3).

Um einen verfälschenden Einfluss durch die verspannungsinduzierte Aufspaltung zu vermeiden, werden die ersten Untersuchungen zur Modencharakteristik elliptischer Mikrokavitäten an Quantenfilmproben durchgeführt, welche nur eine sehr geringe Polarisationsaufspaltung zeigen. Im zweiten Teil werden die hierbei gewonnenen Erkenntnisse auf die Quantenpunktproben übertragen und erste Ergebnisse zur polarisierten Emission einzelner Quantenpunkte durch elliptische Mikrokavitäten präsentiert.

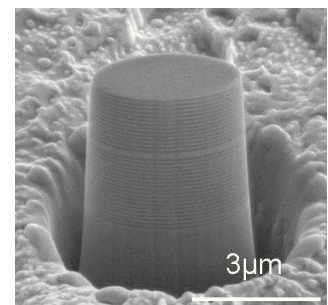


Abbildung 6.5:
Elliptischer Säulenresonator.

6.2.1 Modencharakteristika elliptischer Quantenfilm-Mikrokavitäten

Als spannungsfreie Quantenfilmproben stehen die in Abschnitt 4.1.1 beschriebenen VCSEL-Strukturen mit drei ZnSSe-Quantenfilmen, eingebettet in einen Standard-DBR mit 18.5 unteren und 15 oberen Spiegelpaaren, zur Verfügung. In polarisationsaufgelösten Messungen an zirkularen Säulenresonatoren mit Durchmessern im Bereich bis 4 μm konnte lediglich bei einigen wenigen Strukturen eine Polarisationsaufspaltung der Moden nachgewiesen werden, welche für die Fundamentalmode meist im Bereich von wenigen 10 μeV liegt. Diese Modenaufspaltung besitzt keine Abhängigkeit vom Durchmesser und lässt sich vermutlich auf eine geringe, herstellungsbedingte Elliptizität durch den Strukturierungsprozess zurückführen. Dabei befindet sich die Elliptizität der Säulenresonatoren in einem Rahmen, der mittels REM nicht nachweisbar ist. Die sehr hohe Qualität der Proben mit Q-Faktoren von bis zu $Q = 16\,300$ erlaubt dabei die Detektion selbst geringster spektraler Veränderungen der Modenposition.

In Abbildung 6.6 (a) ist das μPL -Spektrum eines Säulenresonators mit elliptischem Querschnitt (Achsenlängen: $a = 2.14\,\mu\text{m}$ und $b = 0.69\,\mu\text{m}$) im spektralen Bereich der fundamentalen Mode gezeigt ($T = 4\,\text{K}$). Die gestrichelte Kurve mit einem Maximum bei 2.4714 eV wurde unter einer Polarisatoreinstellung von 0° gemessen, während das durchgezogene Spektrum orthogonal dazu unter 90° aufgenommen wurde und ein Emissionsmaximum bei 2.4760 eV besitzt.

Die spektrale Aufspaltung der fundamentalen Mode in zwei orthogonal zueinander polarisierte

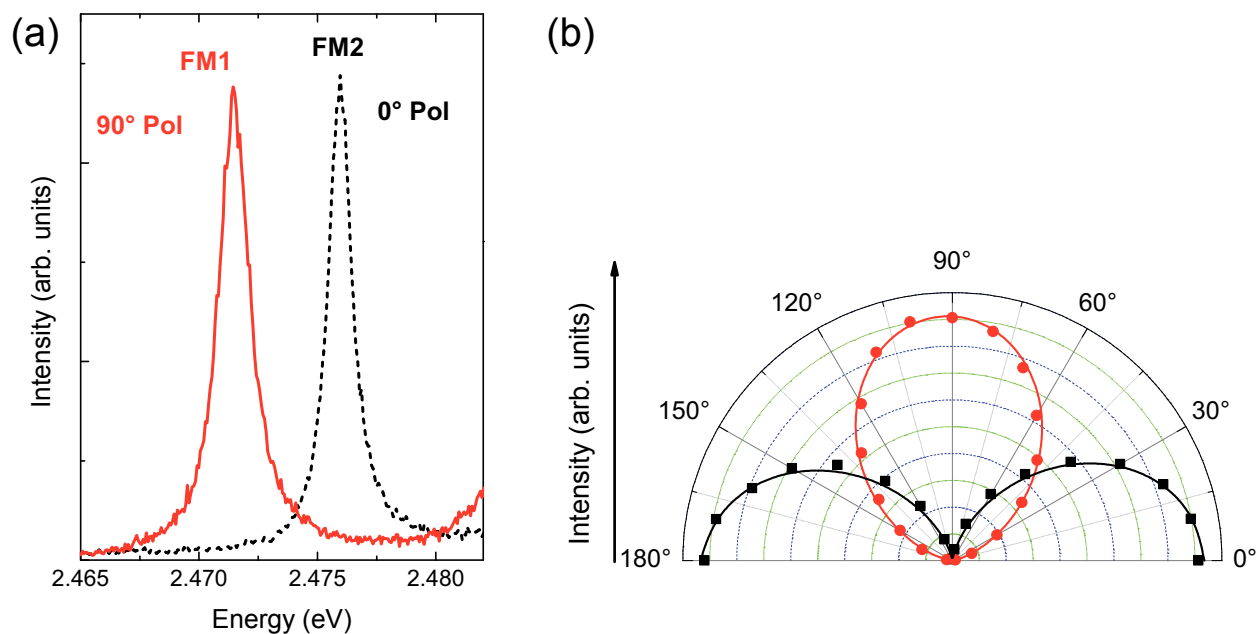


Abbildung 6.6: (a) Fundamentale Mode eines Säulenresonators mit elliptischem Querschnitt (Hauptachsen: $a = 2.14\,\mu\text{m}$ bzw. $b = 0.69\,\mu\text{m}$) gemessen für Polarisatoreinstellungen von 0° bzw. 90° . Die beiden unterschiedlich polarisierten Komponenten der FM sind dabei spektral um 4.5 meV voneinander getrennt. (b) Vergleich der gemessenen Intensitäten desselben Säulenresonators für Polarisatoreinstellungen von 0° bis 180° (Datenpunkte) mit dem theoretisch erwarteten Verlauf (durchgezogene Linie) für die beiden Komponenten der FM (Quadrate: FM1 - 0° polarisiert, Kreise: FM2 - 90° polarisiert). Messung bei $T = 4\,\text{K}$.

Komponenten ist deutlich erkennbar und lässt sich zu $\Delta E_{0^\circ, 90^\circ} \approx 4.5 \text{ meV}$ bestimmen. Im Vergleich zu zirkularen, intrinsisch verspannten Säulenresonatoren mit ähnlichem Durchmesser ist die Aufspaltung damit in etwa um einen Faktor 20 größer. Die Intensitäten der beiden orthogonal zueinander polarisierten Moden sind in Abbildung 6.6 (b) für Polarisatoreinstellungen von 0° bis 180° aufgetragen. Kreise (Quadrate) entsprechen den Messpunkten an der spektralen Position von Mode FM1 (FM2), für beide Moden wurde ein konstanter Hintergrund abgezogen. Die durchgezogenen Linien stellen eine Anpassung der Messwerte nach Gleichung 6.1 dar (für FM2 entsprechend mit $\sin^2(\Phi)$), welche den experimentellen Verlauf sehr gut wiedergeben. Im Gegensatz zur Quantenpunktprobe mit zirkularen Säulenresonatoren aus Abbildung 6.2 sind die maximalen Intensitäten der beiden orthogonal zueinander polarisierten Komponenten FM1 und FM2 fast identisch. Dieses Ergebnis belegt die Vermutung der polarisierten Emission aus den Quantenpunkten im Fall der zirkularen Säulenresonatoren aus Abschnitt 6.1. Aufgrund des größeren spektralen Abstandes zwischen den beiden Moden im Vergleich zu den zirkularen Säulenresonatoren lassen sich die Messwerte der elliptischen Säulenresonatoren genauer anpassen. Dies führt zu einer kleineren Abweichung zwischen den gemessenen und berechneten Intensitäten für die jeweilige Polarisatoreinstellung gegenüber den zirkularen Strukturen in Abbildung 6.2. Betrachtet man den Polarisationszustand der emittierten Photonen unter Berücksichtigung des jeweiligen konstanten Hintergrundes, so lässt sich für die spektralen Positionen der beiden orthogonal polarisierten Moden bei 2.4714 eV bzw. 2.4760 eV jeweils ein Polarisationsgrad von über 98 % bestimmen.

Zur Untersuchung der Abhängigkeit der Aufspaltung $\Delta E_{0^\circ, 90^\circ}$ von der Elliptizität $\varepsilon = \sqrt{a/b} - 1$ der Säulenresonatoren wurden Mikroresonatoren mit unterschiedlichen Achsenverhältnissen a/b hergestellt. Zur besseren Vergleichbarkeit befinden sich alle Mikroresonatoren auf dem selben Bereich der Probe. In Abbildung 6.7 ist die gemessene spektrale Aufspaltung der beiden orthogonal zueinander polarisierten Komponenten der fundamentalen Mode gegen die Elliptizität aufgetragen (Quadrate). Für den bereits in Abbildung 6.6 gezeigten Säulenresonator mit einer Elliptizität von 0.76 ergibt sich die größte Modenaufspaltung von 4.5 meV . Mit abnehmender Elliptizität nimmt auch die Modenaufspaltung ab. Diese Abnahme ist für Elliptizitäten größer als 0.4 wesentlich stärker ausgeprägt als für Elliptizitäten kleiner als 0.4. Für einen runden Säulenresonator, entsprechend einer Elliptizität von 0, ist eine Aufspaltung von $180 \mu\text{eV}$ erkennbar. Diese unerwartet große Aufspaltung kann entweder, wie bei den Quantenpunktproben, durch eine lokale Verspannung der planaren Probe an der Stelle des Säulenresonators verursacht werden, oder aber über einen herstellungsbedingten, leicht asymmetrischen Querschnitt, welcher im REM nicht nachgewiesen werden kann.

Die experimentell erhaltenen Daten lassen sich mit der berechneten Aufspaltung der Moden nach Gleichung 6.2 vergleichen (Kreise). Erwartungsgemäß ergibt die Rechnung für einen zirkularen Säulenresonator keine Aufspaltung der Moden. Während die Messergebnisse mit den Berechnungen für eine Elliptizität von 0.38 noch relativ genau übereinstimmen, weichen sie mit zunehmender Elliptizität stärker voneinander ab. Der Grund für diese Differenz ist vermutlich eine Kombination aus zwei unterschiedlichen Effekten. Zum einen wurde Formel 6.2 für kleine elliptische Abweichungen von zirkularen Säulenresonatoren entwickelt und wird folglich mit zunehmender Elliptizität unpräziser. Zum anderen können eventuell in den Proben vorhandene Verspannungen nach der Prozessierung die Elliptizität der Probe verringern, so dass die Messwerte für geringere Elliptizitäten als die angegebenen aufgenommen wurden.

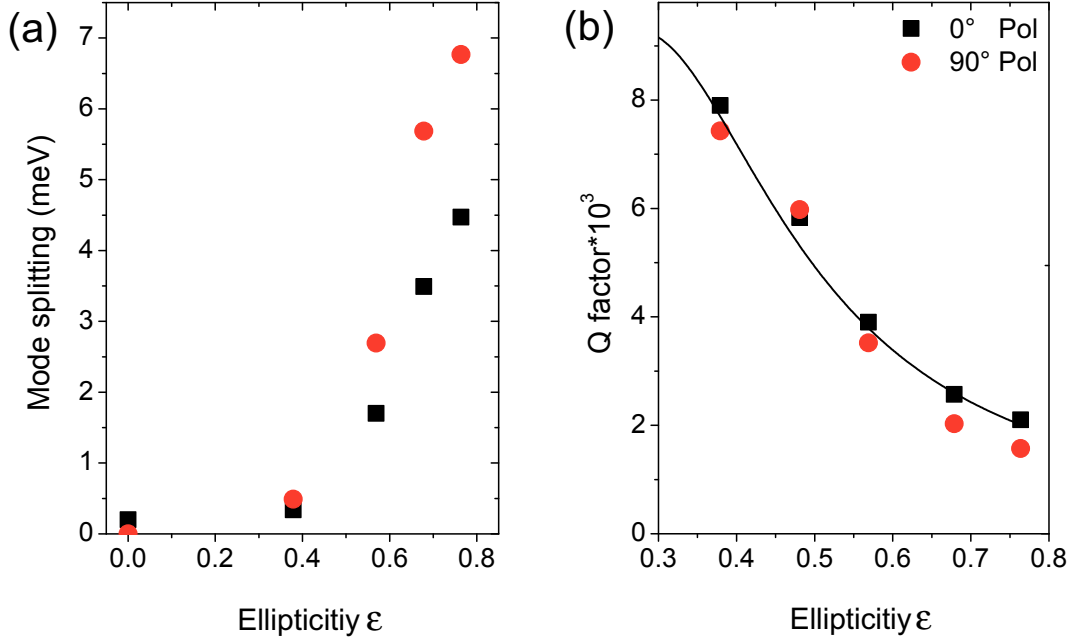


Abbildung 6.7: (a) Auftragung der Aufspaltung der FM in Abhängigkeit von der Elliptizität der untersuchten Säulenresonatoren. Die Quadrate stellen experimentelle Messpunkte bei 80 K dar, wohingegen die Kreise den nach Formel 6.2 berechneten Werten entsprechen. (b) Abhängigkeit des Q-Faktors von der Elliptizität der Säulenresonatoren. Es sind jeweils die Q-Faktoren der beiden orthogonal zueinander polarisierten Komponenten der fundamentalen Mode aufgetragen.

Für einen Einfluss lokaler Verspannungen spricht die für Quantenfilmproben sehr große Modenaufspaltung des zirkularen Säulenresonators ($\epsilon = 0$) von $\Delta E_{0^\circ, 90^\circ} = 180 \mu\text{eV}$, welcher direkt neben den elliptischen Säulenresonatoren prozessiert wurde. Der qualitative Verlauf der Messdaten kann jedoch durch die Berechnungen gut reproduziert werden. Die experimentelle Messkurve liefert einen Zusammenhang zwischen Elliptizität und Modenaufspaltung. Damit ist es möglich, über die gezielte Wahl der Elliptizität der Mikroresonatoren die Aufspaltung der Moden je nach Einsatzgebiet vor der Strukturierung festzulegen.

Bei einem Vergleich der in dieser Arbeit erzielten Modenaufspaltungen mit den Ergebnissen aus der systematischen Studie von *B. Gayral et al.* muss das unterschiedliche Materialsystem berücksichtigt werden. Hierfür ist die Definition eines materialunabhängigen Radius $r^* = \frac{r}{n \cdot \lambda}$ hilfreich, welcher den mittleren Radius $r = \sqrt{a \cdot b}$ der elliptischen Säulenresonatoren [21] in Bezug zur Wellenlänge im jeweiligen Halbleitermaterial $n \cdot \lambda$ setzt. Auf diese Weise lassen sich die Abmessungen der unterschiedlichen Halbleiter direkt miteinander vergleichen. Extrapoliert man die Messungen von *B. Gayral et al.* zu größeren Elliptizitäten, so lässt sich einer Elliptizität von $\epsilon = 0.76$ und einer Modenaufspaltung von $E_{0^\circ, 90^\circ} = 4.5 \text{ meV}$ ein materialunabhängiger Radius von $r^* = 0.21$ zuordnen. Dieser Radius ist um etwa die Hälfte kleiner als der Radius von $r^* = 0.45$ für dieselbe Elliptizität und Modenaufspaltung im hier präsentierten ZnSe-Materialsystem. Damit kann für das II-VI-Materialsystem bereits bei größeren relativen Abmessungen der Strukturen dieselbe Modenaufspaltung wie für das GaAs-Materialsystem erreicht werden, was das Potential der ZnSe-basierten Mikrokavitäten für eine polarisierte Emission verdeutlicht.

Um die beiden orthogonal zueinander polarisierten Komponenten der Fundamentalmode spektral voneinander trennen zu können, ist neben der spektralen Modenaufspaltung auch die Halbwertsbreite der Moden entscheidend. Da die Halbwertsbreite direkt mit dem Q-Faktor verknüpft ist, wird in der Regel dieser zur Charakterisierung der Moden angegeben. Aus der FWHM der Moden FM1 und FM2 aus Abbildung 6.6 (a) lassen sich für die beiden Polarisationsrichtungen Q-Faktoren von $Q_{90^\circ} = 1\,570$ für FM1 bzw. von $Q_{0^\circ} = 2\,030$ für FM2 bestimmen. Die abweichenden Q-Faktoren der beiden Polarisationsrichtungen beruhen auf den unterschiedlichen Feldverteilungen der beiden Moden, welche entlang der langen bzw. kurzen Achse der Ellipse und damit orthogonal zueinander ausgerichtet sind. Durch die unterschiedliche Ausrichtung des optischen Feldes ist auch der Einfluss der Rauigkeit der Seitenwände, welcher den Q-Faktor reduziert, für die beiden Moden unterschiedlich. Die Q-Faktoren der elliptischen Säulenresonatoren sind deutlich kleiner als die Q-Faktoren von bis zu 14 000 von zirkularen Säulenresonatoren mit vergleichbaren Durchmessern. Um die Ursache der von zirkularen Säulenresonatoren abweichenden Q-Faktoren zu klären, sind in Abbildung 6.7 (b) die Q-Faktoren der für Teilbild (a) prozessierten elliptischen Säulenresonatoren für die beiden Polarisatoreinstellungen von 0° (Quadrate) und 90° (Kreise) gegen die Elliptizität der Kavitäten aufgetragen. Mit Ausnahme des Säulenresonators mit einer Elliptizität von 0.48 weist die 0° polarisierte Mode stets einen geringfügig höheren Q-Faktor als die 90° polarisierte Mode auf. Insgesamt nimmt der Q-Faktor mit zunehmender Elliptizität für beide Komponenten deutlich ab. Dieser Trend steht im Gegensatz zu den in [216] gezeigten Ergebnissen, bei welchen mit zunehmender Elliptizität der Q-Faktor einer Polarisationsrichtung zunahm. Die Ursache liegt vermutlich in der unterschiedlichen Strukturierung der elliptischen Säulenresonatoren im Vergleich zu den zirkularen Säulenresonatoren begründet. Wegen der fehlenden Rotationssymmetrie der elliptischen Säulenresonatoren werden diese bei der Prozessierung durch eine zeilenweise Strahlführung strukturiert, für welche eine leicht erhöhte Rauigkeit der Seitenwände der Säulenresonatoren nicht ausgeschlossen werden kann (siehe Abschnitt 4.2). Eine erhöhte Rauigkeit der Seitenwände hätte wiederum verstärkte radiale Streuverluste und damit einen geringeren Q-Faktor zur Folge [175]. Da mit zunehmender Elliptizität die Intensität des optischen Feldes an den Seitenwänden zunimmt, würden sich automatisch auch die radialen Streuverluste verstärken und dadurch den Q-Faktor verringern. Der Einfluss radialer Streuverluste auf den Q-Faktor lässt sich nach Formel 2.20 aus Abschnitt 2.3 beschreiben. Diese für zirkulare Säulenresonatoren entwickelte Formel muss für den Fall elliptischer Säulenresonatoren leicht modifiziert werden. Hierfür wird der Streuterm durch $1/Q_{scatter} = \kappa J_0^2(\varepsilon) \varepsilon$ ersetzt, wobei κ eine Anpassungskonstante und J_0 die Besselfunktion darstellen. Eine Anpassung der unter einer Polarisatoreinstellung von 0° erhaltenen Q-Faktoren mit dieser Gleichung für die verschiedenen Elliptizitäten ergibt den in Abbildung 6.7 (b) als durchgezogene Linie gezeigten Verlauf. Die gute Übereinstimmung der Messwerte und der berechneten Anpassung spricht für die Rauigkeit der Seitenwände als alleinige Ursache für den mit zunehmender Elliptizität abnehmenden Q-Faktor.

6.2.2 Polarisierte Emission einzelner Quantenpunkte

Bei der Übertragung der im letzten Abschnitt gewonnen Erkenntnisse über die Modenaufspaltung elliptischer Säulenresonatoren auf die Quantenpunktproben muss die interne Verspannung der Quantenpunktproben beachtet werden. Je nach Ausrichtung der Ellipse relativ zu den auf der Probenoberfläche sichtbaren Liniendefekten wirkt die intrinsische Modenaufspaltung der durch die Elliptizität hervorgerufenen Aufspaltung entgegen oder

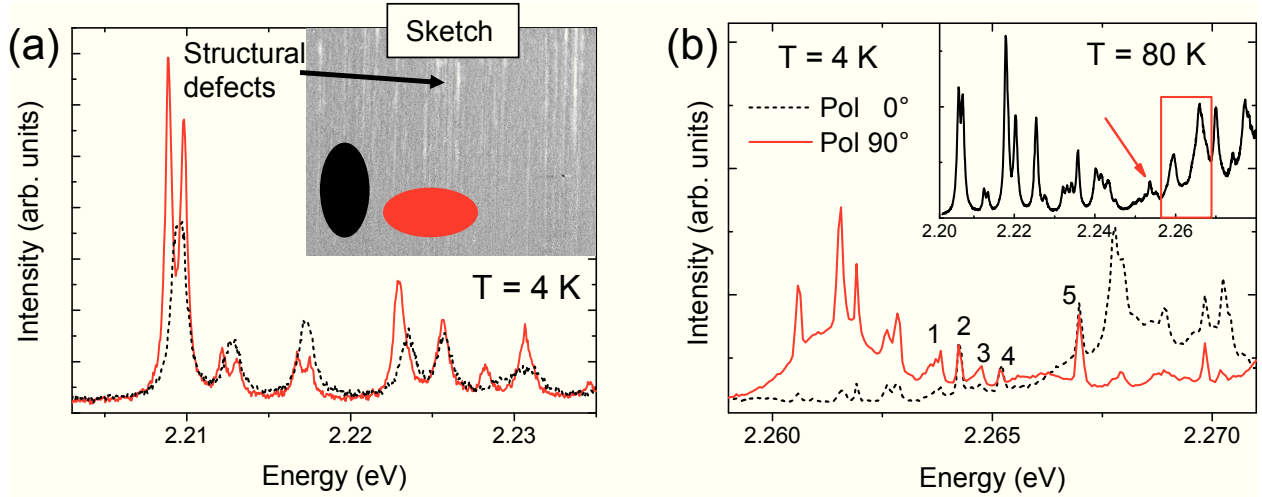


Abbildung 6.8: (a) PL-Spektren für zwei identische elliptische Säulenresonatoren ($a = 4.24\text{ }\mu\text{m}$ und $b = 1.66\text{ }\mu\text{m}$) deren große Achse parallel (gestrichelt) bzw. senkrecht (durchgezogen) zu den auf der Probenoberfläche sichtbaren Defekten angeordnet ist. Die Messung erfolgte ohne Polarisator im Nachweisstrahlengang. Im eingesetzten Teilbild ist zur Veranschaulichung eine REM-Aufnahme der Probenoberfläche mit der skizzierten Lage der Ellipsen relativ zu den strukturellen Defekten der Probenoberfläche gezeigt (nicht maßstabgetreu). Messung bei $T = 4\text{ K}$. (b) Eingesetztes Bild: Unpolarisiertes PL-Spektrum eines QD-Säulenresonators mit elliptischem Querschnitt ($a = 3.89\text{ }\mu\text{m}$ und $b = 1.89\text{ }\mu\text{m}$) für eine Temperatur von 80 K . Hauptbild: Vergrößerte Darstellung des im eingesetzten Bild markierten Bereiches für die beiden Polarisationsrichtungen von 0° (gestrichelt) und 90° (durchgezogen) und $T = 4\text{ K}$.

verstärkt diese. In Abbildung 6.8(a) ist exemplarisch das PL-Spektrum zweier identischer Ellipsen (Hauptachsen $a = 4.24\text{ }\mu\text{m}$ und $b = 1.66\text{ }\mu\text{m}$) für eine orthogonale (durchgezogene Kurve) bzw. parallele (gestrichelte Kurve) Ausrichtung der Ellipse zu den Defekten dargestellt (siehe eingesetztes REM-Bild). Während das Spektrum für eine orthogonale Ausrichtung der Ellipsen zu den Defekten eine deutliche Aufspaltung der fundamentalen Mode von etwa 1 meV zeigt, ist für die parallele Ausrichtung keine Modenaufspaltung auszumachen. Auffällig ist jedoch die weit größere Breite der fundamentalen Mode bei paralleler Ausrichtung im Vergleich zur senkrechten Ausrichtung. Durch eine polarisationsaufgelöste PL-Messung lässt sich auch für die parallele Ausrichtung der Ellipse zu den Defektlinien eine Aufspaltung der Moden von etwa $400\text{ }\mu\text{eV}$ nachweisen.

Im eingesetzten Bild in Abbildung 6.8(b) ist das ohne Polarisator im Nachweis gemessene PL-Spektrum eines elliptischen Säulenresonators (Hauptachsen $a = 3.89\text{ }\mu\text{m}$ und $b = 1.89\text{ }\mu\text{m}$) gezeigt. Bei einer Proben temperatur von 80 K wirken die spektral verbreiterten Emissionslinien der Quantenpunkte als interne Lichtquelle zur Ausleuchtung der Moden. Der markierte Ausschnitt ist im Hauptbild vergrößert für die beiden Polarisationsrichtungen von 0° und 90° und $T = 4\text{ K}$ dargestellt. Bei dieser Temperatur sind die Moden von spektral scharfen Emissionslinien einzelner CdSe-Quantenpunkte überlagert. Durch die Polarisationsaufspaltung ist die Mode bei 2.262 eV nur für eine Polarisatoreinstellung von 90° detektierbar, während die Mode bei 2.268 eV nur für 0° sichtbar ist. Die stark erhöhte Auskoppel effizienz der Quantenpunkte bei spektralem Überlapp mit einer Kavitätsmode ist für beide Polarisationsrichtungen deutlich zu erkennen. So emittieren die Quantenpunkte im spektralen

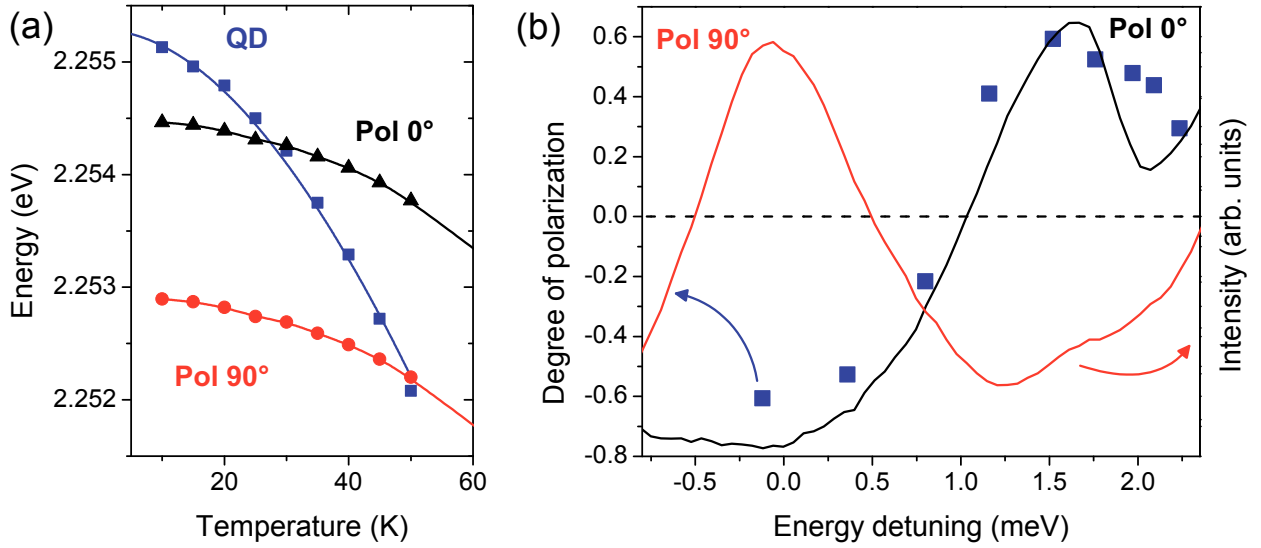


Abbildung 6.9: (a) Spektrale Abhängigkeit der Emission des markierten Quantenpunktes aus Abbildung 6.8 (b) sowie der beiden unterliegenden und orthogonal zueinander polarisierten Moden von der Temperatur. Der Verlauf der Quantenpunktemission wurde nach Varshni mit $E_0 = 2.2553$, $\alpha = (3.7 \pm 0.4) \cdot 10^{-4} \text{ eV/K}$ und $\beta = (250 \pm 4) \text{ K}$ angepasst. (b) Polarisationsgrad der Quantenpunktemission in Abhängigkeit von der spektralen Lage der Emission relativ zu den beiden orthogonal polarisierten Moden.

Bereich von 2.260 eV bis 2.262 eV hauptsächlich in die 90° polarisierte Mode, während die 0° polarisierte Emission stark unterdrückt ist. Entsprechend ist im Bereich von 2.267 eV bis 2.272 eV die Quantenpunkt-Emission unter 0° gegenüber der Emission unter 90° stark erhöht. Quantenpunkte, welche spektral in keine der beiden Moden emittieren, z. B. die Quantenpunkte 2-4 in Abbildung 6.8 (b), besitzen eine leicht stärkere Emission unter 90°. Diese schwache Polarisation ist vermutlich auf eine asymmetrische Form der Quantenpunkte zurückzuführen [152, 272]. Somit führt die Polarisationsaufspaltung der Moden zusammen mit der erhöhten Auskoppelleffizienz eines Quantenpunktes bei Resonanz mit einer Kavitätsmode zur Detektion einer polarisierten Quantenpunktemission.

Die Auskoppelleffizienz der Quantenpunktemission aus dem Resonator kann durch eine Veränderung des spektralen Überlapps zwischen Quantenpunktemission und Kavitätsmode beeinflusst werden [77]. Eine einfache und nicht-permanente Methode hierzu ist die Veränderung der Proben temperatur, durch welche sich die relative spektrale Lage der Quantenpunktemission zur Kavitätsmode verändern lässt (siehe Abschnitt 2.4.1). Der bei 2.55 eV (80 K) emittierende und durch einen Pfeil markierte Quantenpunkt des eingesetzten Spektrums aus Abbildung 6.8 (b) bietet sich aufgrund der Temperaturstabilität der Quantenpunkt-Emission für eine solche Studie an. In Abbildung 6.9 (a) ist dessen Emissionsenergie sowie die spektrale Lage der beiden unterliegenden und orthogonal zueinander polarisierten Moden in Abhängigkeit von der Temperatur in einem Bereich von 10 K bis 50 K gezeigt. Die auf der Verringerung der Bandlücke basierende Abnahme der Emissionsenergie des Quantenpunktes wurde nach Varshni angepasst (Gleichung 2.3). Die raschere Abnahme der Emissionsenergie des Quantenpunktes mit der Temperatur im Vergleich zur Verschiebung der spektralen Position der Moden führt zu einer Resonanz von Quantenpunktemission und 0° bzw. 90° polarisierter Mode bei einer Temperatur von etwa 27.5 K respektive 50 K. Da der detek-

tierte Polarisationsgrad der Quantenpunktemission von der Polarisation der Mode abhängt, in welche der Quantenpunkt hauptsächlich emittiert, sollte sich der Polarisationsgrad mit der Temperatur ebenfalls ändern. In Abbildung 6.9 (b) ist daher der Polarisationsgrad der detektierten Quantenpunktemission in Abhängigkeit von der relativen spektralen Lage der Quantenpunktemission zu den orthogonal polarisierten Moden aufgetragen. Die Abszisse gibt die spektrale Differenz zwischen der Emissionsenergie des Quantenpunktes und dem Maximum der unter 90° polarisierten Mode an. Bei einem Energieunterschied von 0 meV wird der Großteil der Emission in die 90° polarisierte Mode eingekoppelt und entsprechend ein Polarisationsgrad von -0.61 erreicht. Bei zunehmender spektraler Abweichung von der Lage der 90° polarisierten Mode koppelt der Quantenpunkt immer stärker an die 0° polarisierte Mode, und entsprechend nimmt der Polarisationsgrad der Emission ab. Ab einer Abweichung von etwa 1.1 meV ist die Ankopplung an die 0° polarisierte Mode stärker als an die 90° polarisierte Mode. Ab diesem Wert wird die Emission zunehmend in die 0° polarisierte Mode eingekoppelt, bis sie im Fall der Resonanz bei etwa 1.6 meV den maximalen Polarisationsgrad von +0.6 erreicht. Auf diese Weise kann durch eine reversible Veränderung der Temperatur der Polarisationsgrad der emittierten Photonen eines Quantenpunktes zwischen 61 % unter 90° polarisiert und 60 % unter 0° polarisiert eingestellt werden.

Mit diesem Verfahren der Temperaturabstimmung wurde auch die Emissionsenergie des spektral bei 2.2614 eV (für $T = 4$ K) emittierenden Quantenpunktes aus dem Hauptbild von Abbildung 6.8 (b) relativ zur unterliegenden Kavitätsmode verschoben. Aus den im eingesetzten Bild von Abbildung 6.10 aufgetragenen Temperaturabhängigkeiten der Quantenpunktemission sowie der spektralen Lage der Kavitätsmode ergibt sich für die Resonanz eine Temperatur von etwa 15 K, bei welcher der maximale Polarisationsgrad zu erwarten ist. Die experimentell ermittelte Verschiebung der Quantenpunktemission mit der Temperatur lässt sich recht gut durch eine Anpassung nach *Varshni* mit den Parametern $\alpha = (3.4 \pm 0.4) \cdot 10^{-4}$ eV/K, $\beta = (253 \pm 5)$ K und der Bandlücke bei 0 K von $E_0 = 2.2614$ eV wiedergeben. Im Hauptbild von Abbildung 6.10 sind die beiden unter 0° (gestrichelt) und 90° (durchgezogene Linie) ermittelten Photolumineszenzspektren aufgetragen. Zur Verdeutlichung der Lage der Moden wurde dem unter 90° erhaltenen Spektrum ein spektral angepasstes, bei 80 K aufgenommenes, Spektrum (gepunktet) überlagert. Die Auskoppelleffizienz des Quantenpunktes ist erwartungsgemäß für die 90° polarisierte Mode deutlich stärker als für die 0° polarisierte Komponente. Aus den Intensitäten ergibt sich unter Berücksichtigung des jeweiligen konstanten Hintergrundes ein Polarisationsgrad von über 85 %.

Für das GaAs-Materialsystem konnte mit elliptischen Säulenresonatoren durch eine temperaturabhängige Abstimmung der Quantenpunktemission auf die spektrale Lage orthogonal polarisierter Moden der Polarisationsgrad ebenfalls verändert werden. Dabei wurden etwas höhere Werte von + 70 % bis - 95 % erreicht, zwischen welchen sich der Polarisationsgrad frei einstellen lässt [22]. Der maximal erreichte Polarisationsgrad liegt mit 95 % [217, 276] nur geringfügig über dem in dieser Arbeit erreichten Polarisationsgrad. Bei diesem Vergleich muss jedoch beachtet werden, dass die Arbeiten auf dem GaAs-Materialsystem an Mikroresonatoren mit Q-Faktoren von über 10 000 publiziert wurden, während für die hier untersuchten höheren Moden Q-Faktoren von etwa 1 380 vorlagen. Durch die höheren Q-Faktoren lagen die beiden unterschiedlich polarisierten Moden spektral wesentlich näher beieinander, wodurch das benötigte Temperaturintervall zur spektralen Verschiebung der Quantenpunkte deutlich reduziert wurde.

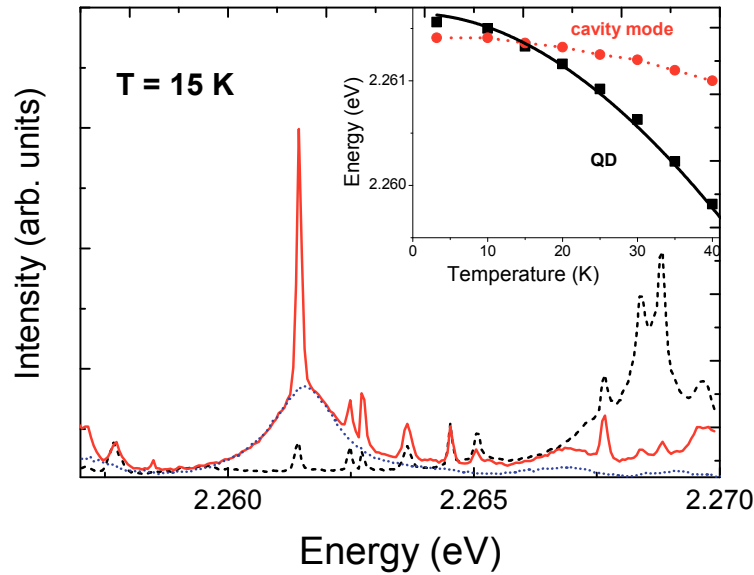


Abbildung 6.10: *Eingesetztes Bild: Temperaturabhängigkeit der Emission eines Quantenpunktes (Quadrate) sowie der spektralen Lage des Maximums einer höheren Kavitätsmode (Kreise). Großes Bild: PL-Spektren des entsprechenden QDs für die beiden Polarisationsrichtungen von 0° (gestrichelt) und 90° (durchgezogen) für $T = 15\text{ K}$. Zur Verdeutlichung der Lage der Kavitätsmoden wurde der 90° polarisierten Messung bei 15 K (durchgezogene Linie) eine, spektral verschobene, Messung bei 80 K (gepunktete Linie, ebenfalls 90° polarisiert) überlagert.*

Insgesamt konnten auf dem II-VI-Materialsystem mit einem deutlich schlechteren optischen Einschluss der untersuchten Moden vergleichbare Ergebnisse erzielt werden wie auf dem GaAs-System. Durch eine Verbesserung der Probenstrukturierung sollten die für zirkuläre Quantenpunkt-Säulenresonatoren bereits nachgewiesenen Q-Faktoren von 7880 auch für elliptische Säulenresonatoren realisierbar sein. Insbesondere unter Beachtung der höheren Temperaturstabilität der exzitonen Emission von CdSe-Quantenpunkten erscheinen diese gegenüber dem GaAs-Materialsystem für einen kommerziellen Einsatz bei erhöhten Temperaturen überlegen.

6.3 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurden zwei verschiedene Methoden zur Erzeugung einer polarisierten Emission aus Mikrokavitäten aufgezeigt.

Im ersten Teil konnte an zirkulären Säulenresonatoren eine Aufhebung der Polarisationsentartung der Fundamentalmode gezeigt werden. Dabei wurde eine spektrale Aufspaltung zwischen den beiden orthogonal zueinander polarisierten Komponenten von bis zu $440\text{ }\mu\text{eV}$ gemessen, welche zu einem Polarisationsgrad von 82 % für das an der spektralen Position der Moden emittierte Licht führten. Liniendefekte in der Probenoberfläche, die Zunahme der Aufspaltung mit zunehmendem Durchmesser sowie eine Reduzierung der Aufspaltung durch Tempern deuten auf eine interne Verspannung als Ursache der Aufspaltung hin, was sich durch theoretische Überlegungen schlüssig belegen lässt.

Als weitere Methode zur Erzeugung einer polarisierten Emission aus Mikrokavitäten wurden im zweiten Abschnitt Säulenresonatoren mit elliptischem Querschnitt präsentiert. Für einen Quantenfilm-Säulenresonator konnte bei einer Elliptizität von 0.76 eine maximale Modenaufspaltung von 4.5 meV erreicht werden, welche zu einem Polarisationsgrad von über 98 % für die beiden orthogonal zueinander polarisierten Komponenten der Fundamentalmode führte. Für Quantenpunktproben konnte durch die Ankopplung der Quantenpunktemission an eine polarisierte Mode Photonen der entsprechenden Polarisationsrichtung effizienter aus dem Resonator ausgekoppelt werden als orthogonal polarisierte Photonen. Dies führt zu einer polarisierten Quantenpunktemission aus elliptischen Säulenresonatoren. Mittels des spektralen Verschiebens der Emission eines einzelnen Quantenpunktes durch orthogonal zueinander polarisierte Moden konnte der Polarisationsgrad über einen Bereich von -61 % bis +60 % variiert werden. Für einen weiteren Quantenpunkt konnte bei spektraler Resonanz von Quantenpunktemission und Kavitätsmode ein maximaler Polarisationsgrad von über 85 % ermittelt werden.

Zusammenfassend konnte in diesem Kapitel das Potential von CdSe-Quantenpunkten zur Erzeugung einer polarisierten Emission eines einzelnen Quantenpunktes mit einstellbarem Polarisationsgrad gezeigt werden. Insbesondere wegen der nachgewiesenen hohen Temperaturstabilität der exzitonischen Emission aus CdSe-Quantenpunkten sind die hier gezeigten Ergebnisse ein wichtiger Schritt auf dem Weg zu effizienten Einzelphotonenquellen bei Raumtemperatur mit einem einstellbaren Polarisationsgrad.

7 Kopplungsphänomene in Mikrokavitäten

Im letzten Kapitel wurden freistehende zirkulare und elliptische Säulenresonatoren untersucht, die für sich als isoliertes System betrachtet wurden. Verbindet man zwei dieser Säulenresonatoren durch einen Steg aus Halbleitermaterial, so wird dadurch eine Wechselwirkung zwischen den optischen Feldern der einzelnen Säulenresonatoren ermöglicht. Eine solche Kopplung von zwei Kavitäten ist insbesondere hinsichtlich der Wechselwirkung von zwei einzelnen Quantenpunkten, welche in den jeweiligen Kavitäten denkbar sind, sehr interessant. Durch eine über die gesamte Struktur delokalisierte optische Mode stünden die beiden Quantenpunkte in Wechselwirkung miteinander. Ein individueller Ausleseprozess der Quantenpunkte wäre hingegen über Moden, welche räumlich nur in einem der beiden Säulenresonatoren lokalisiert sind, möglich. Zusammen mit der im letzten Kapitel beschriebenen polarisierten Emission aus Mikrokavitäten stellt eine solche, im Idealfall schaltbare, Wechselwirkung zwischen zwei räumlich um einige Mikrometer voneinander entfernten Quantenpunkten eine wichtige Grundlage für Experimente der Quanteninformationsverarbeitung dar.

In diesem Kapitel wird die interne Verteilung des optischen Feldes in gekoppelten Mikroresonatoren analysiert und dessen Abhängigkeit von der Kopplungsstärke der beiden Säulenresonatoren geklärt. Experimentell zugänglich ist die optische Modenverteilung in den Mikroresonatoren über eine Messung der Abstrahlung im Fernfeld (siehe Abschnitt 4.3.1). Die Charakterisierung der Modenverteilung geschieht sowohl für symmetrische Strukturen, bei welchen beide Säulenresonatoren den gleichen Durchmesser besitzen, wie auch für asymmetrische Strukturen mit unterschiedlichen Durchmessern der beiden Säulenresonatoren.

Für einen sehr kurzen und breiten Verbindungssteg besitzen diese gekoppelten Kavitäten eine Ähnlichkeit zu den in Abschnitt 6.2 diskutierten elliptischen Säulenresonatoren, weshalb im zweiten Abschnitt die interne optische Feldverteilung in elliptischen Mikrokavitäten untersucht und der Modenverteilung der gekoppelten Säulenresonatoren gegenüber gestellt wird. Die in diesem Kapitel enthaltenen Simulationen der Intensitätsverteilung des optischen Feldes in den Mikrokavitäten wurden unter Benutzung des MPB-Paketes [259] von *Dr. K. Sebold* angefertigt.

7.1 Photonische Moleküle

Die Bezeichnung “photonisches Molekül” für zwei gekoppelte Mikrosäulenresonatoren geht auf die erste Herstellung und Charakterisierung solcher Systeme durch *M. Bayer et al.* auf dem GaAs-Materialsystem zurück und spiegelt die Analogie zur Bildung eines zweiatomigen Moleküls wider [220]. Abbildung 7.1 zeigt eine REM-Aufnahme eines in diesem Abschnitt untersuchten photonischen Moleküls mit identischen Säulenresonatoren von jeweils $2.79\,\mu\text{m}$ Durchmesser und einem Abstand der Säulenmittelpunkte von $\text{CC} = 2.6\,\mu\text{m}$ (*engl.: center-to-center distance, CC*). Da das optische Feld in den

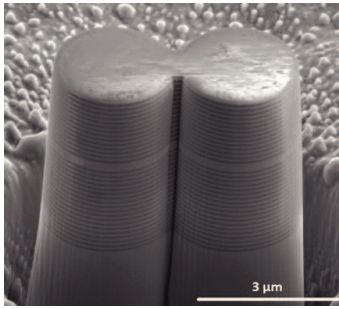


Abbildung 7.1:
Photonisches Molekül.

Säulenresonatoren im Gegensatz zum Analogon der Atome in allen drei Raumrichtungen eingeschlossen ist, muss für eine effektive Kopplung der beiden Säulenresonatoren miteinander ein Verbindungssteg aus Halbleitermaterial zwischen den beiden Resonatoren vorliegen. Falls der Abstand der Mittelpunkte der beiden zirkularen Säulenresonatoren voneinander kleiner ist als die Summe beider Radien, ist diese Verbindung automatisch durch den geometrischen Überlapp der Kavitäten gegeben.

Die im Abschnitt 3.2.4 beschriebenen bisherigen Arbeiten zu gekoppelten Säulenresonatoren und insbesondere photonischen Molekülen wurden allesamt an GaAs-basierten Proben durchgeführt, welche als Einzelphotonenquellen bei erhöhten Temperaturen nicht geeignet sind. Für das II-VI-Materialsystem, welches wegen seiner hohen Exzitonenbindungsenergie für Einzelphotonenemission bei erhöhten Temperaturen vorteilhaft ist, liegen bisher keinerlei Untersuchungen zu gekoppelten Mikrokavitäten vor. Daher soll in diesem Abschnitt geklärt werden, inwieweit sich die auf dem GaAs-System erzielten Ergebnisse auf ZnSe-basierten Mikrokavitäten übertragen lassen.

Alle photonischen Moleküle in dieser Arbeit wurden mit Hilfe fokussierter Ionenstrahlen aus einer planaren VCSEL-Struktur prozessiert, welche als aktives Material eine Schicht aus CdSe/ZnSSe-Quantenpunkten enthält. Die Anregung für die Messung der PL-Spektren wie auch für die Fernfeld-Aufnahmen erfolgte, sofern nicht anders angegeben, stets in der Mitte des photonischen Moleküls mit einer Photonenenergie von 2.71 eV im Dauerstrichbetrieb.

7.1.1 Symmetrische photonische Moleküle

Besitzen die beiden Säulenresonatoren denselben Durchmesser, so ist wegen der geometrischen Symmetrie der Kavität eine sowohl entlang wie auch senkrecht zum Verbindungssteg symmetrische Verteilung des optischen Feldes zu erwarten. In Abbildung 7.2 ist das PL-Spektrum eines symmetrischen photonischen Moleküls (a) zusammen mit der experimentell ermittelten (b) und der berechneten (c) Modenverteilung abgebildet ($d = 2.8 \mu\text{m}$, $CC = 1.9 \mu\text{m}$, $T = 30 \text{ K}$). Die Zuordnung der Modenverteilung zum PL-Spektrum erfolgt über die entsprechenden römischen Zahlen. Bei der Feldverteilung steht die Farbe Rot für eine hohe Intensität, Blau für keine Intensität. Die Abstufung erfolgt auf einer logarithmischen Skala, die Intensitäten verschiedener Moden sind untereinander nicht vergleichbar.

Die fundamentale Mode besteht aus zwei Komponenten, welche einen spektralen Abstand von 1.8 meV besitzen. Aufgrund der zeilenweisen Strahlführung während der FIB-Strukturierung und der damit zu erwartenden größeren Rauigkeit der Seitenflächen erreicht der optische Einschluss mit einem Q-Faktor von $Q = 1\,450$ nicht die Güte der zirkularen Säulenresonatoren mit Q-Faktoren von 14 000 für vergleichbare Durchmesser.

Durch die Kopplung der beiden Säulenresonatoren ergeben sich Intensitätsverteilungen des optischen Feldes, die von den Intensitätsverteilungen isolierter Säulenresonatoren (siehe Abschnitt 3.2.1) deutlich abweichen. Die niederenergetische Komponente der fundamentalen Mode (I) bei 2.224 eV besitzt ein Intensitätsmaximum in der Mitte des photonischen Moleküls und ist damit als einzige Mode auf einen relativ kleinen Bereich lokalisiert. Während die höherenergetische Komponente der fundamentalen Mode (II) mit zwei Maxima des optischen Feldes noch eine relativ einfache Struktur aufweist, wird die Feldverteilung der höheren Moden zunehmend komplexer. So besitzen die Moden III und V drei bzw. vier Feldmaxima entlang

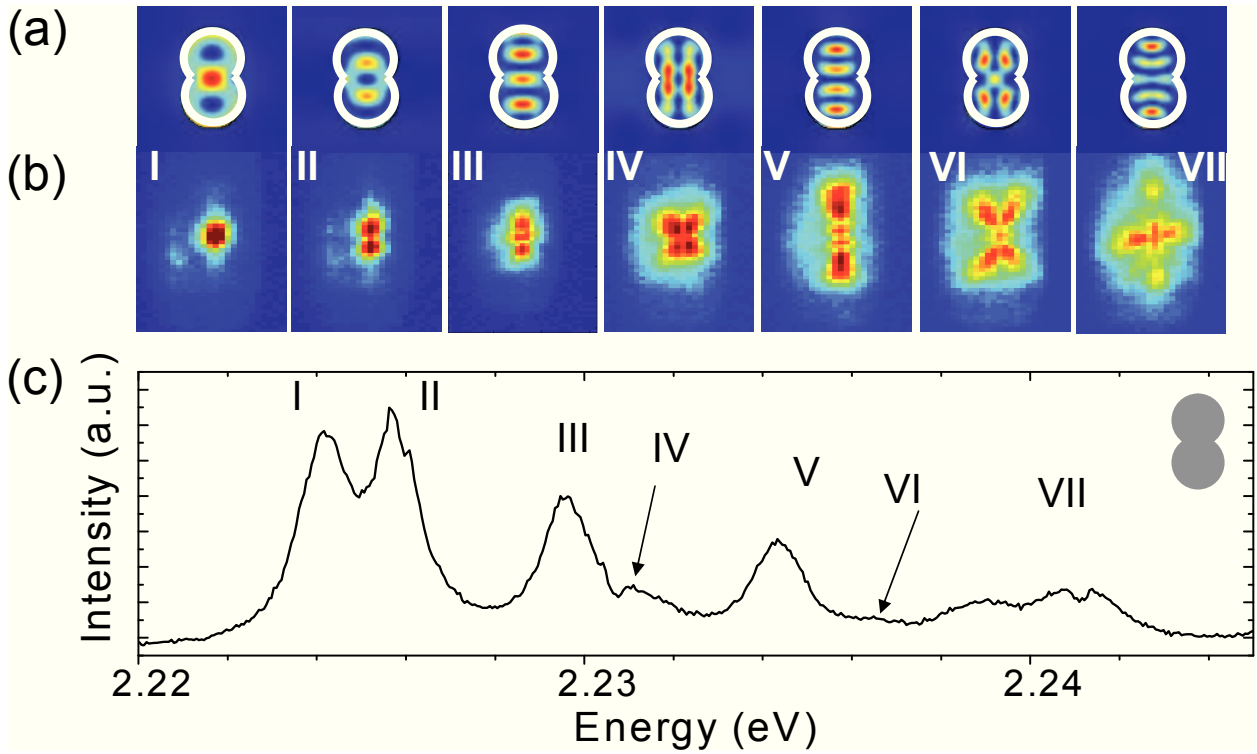


Abbildung 7.2: (a) Berechnete transversal elektromagnetische und (b) experimentell bestimmte räumliche Intensitätsverteilung der im Spektrum entsprechend gekennzeichneten Moden. (c) Bei $T = 30$ K aufgenommenes PL-Spektrum eines photonischen Moleküls ($d = 2.8 \mu\text{m}$, $CC = 1.9 \mu\text{m}$). Alle Messungen erfolgten ohne Polarisator im Nachweisstrahlengang.

der Molekülachse, die Mode IV weist jeweils zwei Feldmaxima parallel bzw. senkrecht zur Molekülachse auf. Die beiden höchsten dargestellten Moden VI und VII haben ebenfalls eine senkrecht zur Verbindung der beiden Säulenresonatoren ausgerichtete Komponente des optischen Feldes. Mit steigender Komplexität der Moden vergrößert sich auch deren räumliche Ausdehnung, so dass sich die höheren Moden über das gesamte photonische Molekül erstrecken und als delokalisiert bezeichnet werden können.

Die vergleichenden theoretischen Berechnungen wurden unter Verwendung der Simulationssoftware MPB erstellt [259]. Die Simulationen bestätigen die experimentell erhaltene optische Fernfeldverteilung des photonischen Moleküls und stimmen sowohl in der Anzahl der Intensitätsmaxima wie auch für deren räumliche Lage mit den experimentellen Ergebnissen der Fernfeldmessungen überein. Allein im Fall von Mode VII weicht die experimentell erhaltene optische Feldverteilung deutlich von der berechneten ab. Die Ursache ist in der spektralen Überlagerung zweier Moden zu suchen. Hierbei wird die eigentliche Mode, wie sie die Berechnung aufzeigt, in horizontaler Richtung spektral von einer zweiten Mode überlagert. Die Überlagerung verschiedener Moden ist auch aus dem PL-Spektrum in Abbildung 7.2 (c) zu sehen. An der spektralen Position von Mode VII existieren mehrere, schwach ausgeprägte Moden, welche sich spektral überlappen.

Für die Erstellung der Simulation wurde das photonische Molekül als senkrecht zur Molekülebene unendlich ausgedehnter Wellenleiter betrachtet (siehe Abschnitt 4.4). Diese Betrachtungsweise erlaubt eine verhältnismäßig einfache Berechnung der internen Feldverteilung. Da jedoch keine Informationen über den Einschluss senkrecht zur Molekülachse in die Be-

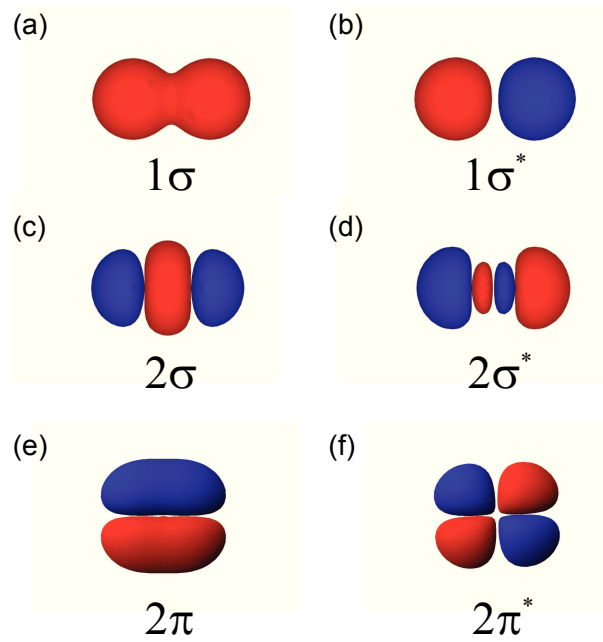


Abbildung 7.3: Elektronendichteverteilung eines zweiatomigen Moleküls. Die Flächen wurden für eine Aufenthaltswahrscheinlichkeit von $|\Psi|^2 = 10^{-4}$ erstellt, die Farben rot und blau stehen für die unterschiedlichen Phasen des Feldes. Bindende (a) und antibindende (b) σ -Zustände, bindende (c) und antibindende (d) p-Zustände in der σ -Konfiguration sowie bindende (e) und antibindende (f) p-Zustände in der π -Konfiguration. Berechnungen mittels Orbital Viewer [277].

rechnung eingehen, ermöglicht diese Methode keine Angaben zur spektralen Position der jeweiligen Moden der Simulation.

Diese optische Feldverteilung photonischer Moleküle wurde von *Bayer et al.* in Analogie zur Elektronendichteverteilung eines zweiatomigen Moleküls diskutiert [220]. Bei einer gegenseitigen Annäherung zweier isolierter Atome führt die Zunahme der Wechselwirkung zu einer Aufspaltung der Energieniveaus der isolierten Atome in bindende und antibindende Molekülorbitale. Einige ausgewählte Molekülorbitale eines solchen zweiatomigen Moleküls sind in Abbildung 7.3 dargestellt. Die Berechnung der Orbitale erfolgte mit dem frei verfügbaren Programm *Orbital Viewer* von *David Manthey*, welches die Molekülorbitale mit dem Verfahren der Linearkombination von Atomorbitalen bestimmt [277]. Im Fall der photonischen Moleküle entsprechen die beiden Säulenresonatoren den Atomen des wasserstoffartigen Moleküls. Die Wechselwirkung der optischen Felder wird durch die Verbindung zwischen den Säulenresonatoren gewährleistet. Durch einen Vergleich der experimentell erhaltenen und berechneten räumlichen Modenverteilung der photonischen Moleküle mit den in Abbildung 7.3 dargestellten Elektronendichteverteilungen des zweiatomigen Moleküls lassen sich den optischen Moden entsprechende Molekülorbitale zuordnen. Das sich aus den s-Zuständen bildende bindende σ -Orbital (1σ) eines zweiatomigen Moleküls besitzt eine gewisse Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Elektronen zwischen den beiden Atomen (Abb. 7.3 (a)). Diesem Zustand entspricht die erste Mode (I) in Abbildung 7.2. Dem antibindenden σ^* -Molekülorbital der s-Zustände mit zwei nahe beieinander liegenden Maxima ($1\sigma^*$) entspricht die zweite Mode (II). Weiterhin können die symmetrischen Molekülorbitale des p-Zustandes in der σ -Konfiguration den Moden III (2σ) und V ($2\sigma^*$) sowie die antisymmetrischen Molekülorbitale des p-Zustandes

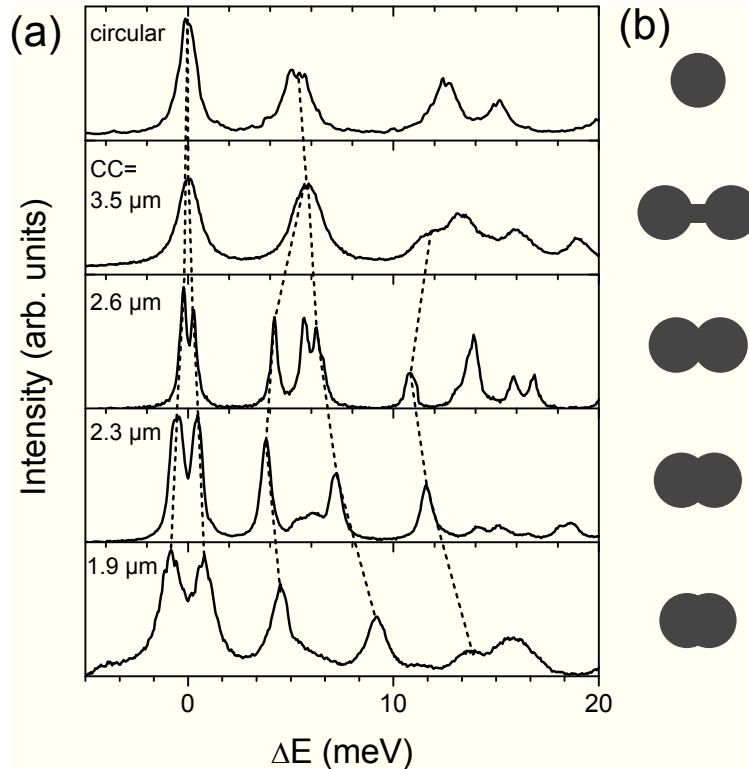


Abbildung 7.4: (a) PL-Spektren von photonischen Molekülen mit identischen Durchmessern der einzelnen Säulenresonatoren und unterschiedlichem CC-Abstand im Vergleich zu einem Spektrum eines runden Säulenresonators. Alle Messungen wurden bei $T = 4\text{ K}$ aufgenommen. Die gestrichelten Linien führen das Auge. (b) Skizzen der photonischen Moleküle mit unterschiedlichem CC-Abstand (nicht maßstabsgetreu).

in der π -Konfiguration den Moden IV (2π) und VI ($2\pi^*$) zugeordnet werden. Für höhere optische Moden (nicht gezeigt) sind Anzeichen für eine Entsprechung zu den d-Molekülorbitalen zu finden.

Um den Einfluss der Kopplungsstärke auf die spektrale Lage der Moden zu untersuchen, wurden mehrere photonische Moleküle mit identischem Durchmesser der Säulenresonatoren von $2.8\text{ }\mu\text{m}$, jedoch unterschiedlichem CC-Abstand hergestellt. Im Fall des größten CC-Abstandes von $3.5\text{ }\mu\text{m}$ sind die beiden Säulenresonatoren durch einen Steg der Länge 930 nm und einer Breite von etwa 710 nm auf Höhe der Kavitätsabstandsschicht miteinander verbunden. Für alle kleineren CC-Abstände besteht die Verbindung aus dem geometrischen Überlapp der zirkularen Säulenresonatoren. Die PL-Spektren von vier dieser photonischen Moleküle mit unterschiedlichem CC-Abstand sind in Abbildung 7.4 (a) vergleichend dem Spektrum eines runden Säulenresonators mit einem Durchmesser von $2.75\text{ }\mu\text{m}$ gegenüber gestellt ($T = 4\text{ K}$). Vergleicht man die Spektren der verschiedenen photonischen Moleküle miteinander, so stellt man mit abnehmendem CC-Abstand eine spektrale Aufspaltung der fundamentalen Mode in zwei Komponenten fest. Diese spektrale Aufspaltung nimmt dabei von einer annähernd kompletten Überlagerung bei einem CC-Abstand von $3.5\text{ }\mu\text{m}$ über eine Aufspaltung von 0.5 meV bei $2.6\text{ }\mu\text{m}$ bis hin zur maximalen Aufspaltung von 1.8 meV für einen CC-Abstand von $1.9\text{ }\mu\text{m}$ zu. Für noch kleinere CC-Abstände, welche experimentell nicht realisiert wurden, wird eine weitere Zunahme der Modenaufspaltung erwartet. Im Grenzfall $\text{CC} \rightarrow 0$

existieren schließlich keine zwei getrennten Säulenresonatoren mehr und die Kopplung bricht zusammen, womit sich erneut die bekannte Modenstruktur des zirkularen Säulenresonators ergibt. Für den größten CC-Abstand von $3.5\text{ }\mu\text{m}$ ähnelt das PL-Spektrum sehr stark dem eines freistehenden Säulenresonators mit vergleichbarem Durchmesser. Der einzelne zirkuläre Säulenresonator kann in diesem Bild als Bestandteil eines photonischen Moleküls mit unendlichem CC-Abstand angesehen werden, bei welchem folglich keine Kopplung zwischen den beiden einzelnen Säulenresonatoren mehr stattfindet. Eine ähnliche Aufspaltung in zwei Komponenten bei Zunahme der Kopplung zwischen den Säulenresonatoren kann auch für die erste höhere Mode beobachtet werden. Hierbei geschieht die Zuordnung der jeweiligen Moden auf Basis der räumlichen Intensitätsverteilung des optischen Feldes aus den Fernfeldaufnahmen. Der spektrale Verlauf der Moden in Abhängigkeit vom CC-Abstand ist für die fundamentale sowie die nächst höheren Moden in Abbildung 7.4 (a) durch entsprechende gestrichelte Linien gekennzeichnet.

Da aufgrund der geometrischen Asymmetrie der photonischen Moleküle eine Polarisationsaufspaltung der Moden nicht ausgeschlossen werden kann, wurden die PL-Spektren aus Abbildung 7.4 (a) zusätzlich polarisationsaufgelöst aufgenommen. Diese Messungen zeigen nur eine geringe Aufhebung der Polarisationsentartung der einzelnen Moden von maximal etwa $400\text{ }\mu\text{eV}$. Zudem ändert sich dieser Wert für die Polarisationsaufspaltung der Moden nur unwesentlich mit dem CC-Abstand der beiden Säulenresonatoren. Die Ursache dieser Polarisationsaufspaltung ist vermutlich eine Kombination aus der intrinsischen Aufspaltung der Quantenpunkt-Proben, für welche in Abschnitt 6.1 für vergleichbare zirkuläre Säulenresonatoren Aufspaltungen von etwa $210\text{ }\mu\text{eV}$ nachgewiesen wurden (siehe Abschnitt 6.1), und der asymmetrischen Struktur der photonischen Moleküle (vgl. Abschnitt 6.2). Damit ist die maximale Polarisationsaufspaltung bei den photonischen Molekülen wesentlich geringer als bei Säulenresonatoren mit elliptischem Querschnitt, für welche eine Polarisationsaufspaltung von bis zu 4.5 meV erreicht werden konnte (für $\varepsilon = 0.76$ siehe Abschnitt 6.2). Betrachtet man jedoch elliptische Säulenresonatoren mit ähnlichen Abmessungen wie die hier vorliegenden photonischen Moleküle, so weisen diese ebenfalls Polarisationsaufspaltungen im Bereich von etwa $400\text{ }\mu\text{eV}$ auf (für $\varepsilon = 0.38$ in Abbildung 6.7).

Die hier beobachtete spektrale Aufspaltung der fundamentalen Mode photonischer Moleküle steht in Übereinstimmung mit Ergebnissen, bei welchen für gekoppelte GaAs-basierte Säulenresonatoren mit quadratischem Querschnitt ebenfalls eine Zunahme der Modenaufspaltung bei Zunahme der Kopplungsstärke festgestellt werden konnte [212, 220]. Die Variation der Kopplungsstärke geschah dabei sowohl über eine Variation der Stegbreite bei festem CC-Abstand wie auch über eine Variation des CC-Abstands bei fester Stegbreite. In beiden Fällen konnte eine zunehmende Aufspaltung der fundamentalen Mode mit ansteigender Kopplungsstärke beobachtet werden. Auch für Systeme aus gekoppelten Defekten in GaAs-basierten photonischen Kristallen konnte eine entsprechende Abhängigkeit der Modenaufspaltung vom CC-Abstand festgestellt werden [230].

Zur Untersuchung der Abhängigkeit der relativen Intensitäten der einzelnen Moden vom exakten Anregungsort auf dem photonischen Molekül wurde ein photonisches Molekül mit einem Säulendurchmesser von $d = 2.24\text{ }\mu\text{m}$ und einem CC-Abstand von $1.6\text{ }\mu\text{m}$ strukturiert. In Abbildung 7.5 (a) sind die entsprechenden PL-Spektren für eine Anregung in der Mitte zwischen den beiden Säulenresonatoren (durchgezogene Linie) sowie für eine Anregung im

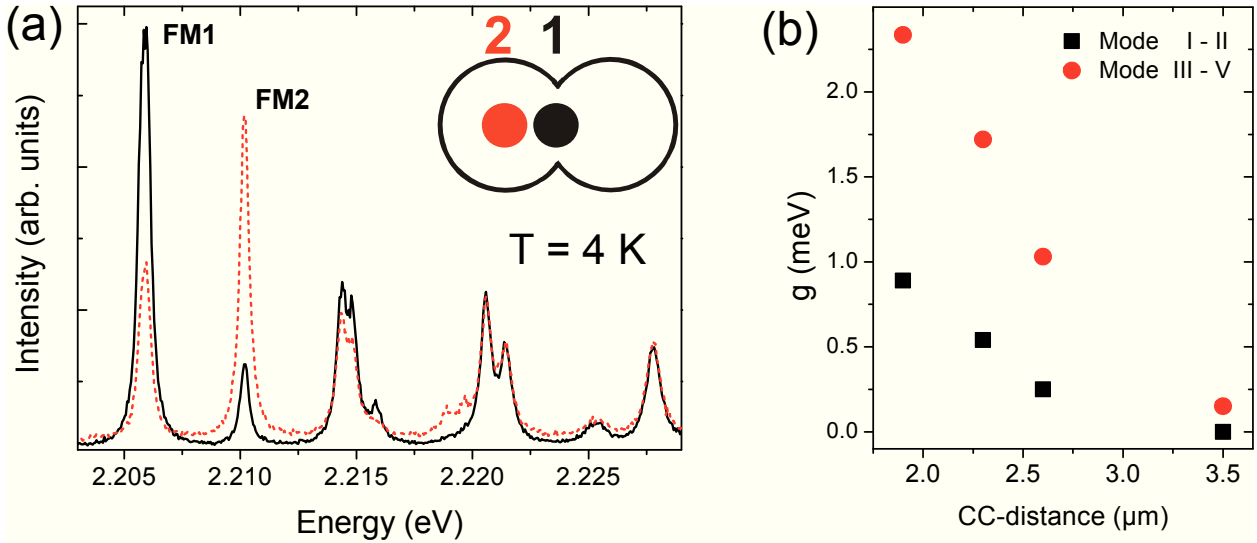


Abbildung 7.5: (a) PL-Spektren eines photonischen Moleküls mit identischen Säulendurchmessern ($d=2.24\ \mu\text{m}$ und CC-Abstand $1.6\ \mu\text{m}$) bei Anregung in der Mitte des Moleküls (durchgezogene Linie) und bei Anregung in einem der beiden Säulenresonatoren (gestrichelte Linie). (b) Experimentell bestimmte Kopplungsstärke zwischen der aufgespaltenen Fundamentalmode (I-II, Quadrate) und der ersten höheren Mode (III-V, Kreise).

Zentrum eines Säulenresonators (gestrichelte Linie) aufgetragen¹. Für den Q-Faktor der Mode FM1 ergibt sich ein Wert von 5 500. Vergleicht man die beiden für unterschiedliche Anregungspositionen erhaltenen Spektren miteinander, so stellt man einen deutlichen Unterschied in der Intensität der beiden Komponenten FM1 bei 2.206 eV und FM2 bei 2.210 eV der Fundamentalmode fest. Bei einer Anregung in der Mitte des photonischen Moleküls ist die Intensität von Mode FM1 um einen Faktor von 2.3 größer als die Intensität von Mode FM2. Für eine Anregung im Zentrum eines der Säulenresonatoren verhält es sich genau entgegengesetzt, hier ist die Intensität der Mode FM2 um einen Faktor 3.9 größer als die Intensität der Mode FM1. Auf die höheren Moden wirkt sich eine Veränderung der Anregungsposition nur unwesentlich aus, ihre Intensitäten unterscheiden sich für die Mode bei 2.2145 eV nur um einen Faktor von 1.1 und sind für die Mode bei 2.221 eV nahezu identisch.

Diese Abhängigkeit der Intensität der fundamentalen Moden vom Anregungsort auf dem photonischen Molekül lässt sich mit Hilfe der optischen Modenstruktur erklären. Betrachtet man die zu den jeweiligen Moden korrespondierende optische Feldverteilung innerhalb des photonischen Moleküls aus Abbildung 7.2, so fällt die gegensätzliche Feldverteilung der Moden FM1 und FM2 auf. Während Mode FM1 ein Intensitätsmaximum in der Mitte des photonischen Moleküls aufweist, besitzt die Mode FM2 gerade dort ein Minimum der Intensität des optischen Feldes. Regt man das photonische Molekül in dessen Mitte an, so wird dort folglich die meiste Energie absorbiert. Die anschließende Emission aus der Mitte des photonischen Moleküls koppelt bevorzugt in Moden, welche an dieser Stelle ein Intensitätsmaximum des optischen Feldes aufweisen. Diese Anforderung wird von Mode FM1 erfüllt, jedoch nicht von Mode FM2. Folglich wird der Hauptteil der Energie in Mode FM1 eingekoppelt. Bei einer Anregung im Zentrum eines Säulenresonators gilt Entsprechendes für die Mode FM2.

¹ Die leicht abweichende Energie der Mode FM1 im Vergleich zu bisherigen Messungen liegt im unterschiedlichen Probenbereich, in welchem das verkleinerte photonische Molekül strukturiert wurde, begründet.

Aufgrund der räumlichen Ausdehnung des zur Anregung verwendeten Laserstrahls wird jedoch stets eine gewisse Fläche angeregt, so dass die Emission teilweise in beide Moden einkoppelt. Da die höheren Moden über das gesamte photonische Molekül delokalisiert sind, führt hier eine Veränderung der Anregungsposition nur zu einer unwesentlichen Änderung der Photolumineszenzintensität.

Diese Methode ermöglicht prinzipiell eine Charakterisierung der optischen Modenstruktur einer Mikrokavität allein durch Messung der relativen Intensitätsverteilung der Moden für verschiedene Anregungsorte auf der Mikrokavität. So untersuchten *Karl et al.* auf diese Weise die Modenstruktur eines photonischen Moleküls mit unterschiedlich großen Säulendurchmessern [225, 226].

Das photonische Molekül aus Abbildung 7.5 weist mit einem Säulendurchmesser von $d = 2.24 \mu\text{m}$ und einem CC-Abstand von $\text{CC} = 1.6 \mu\text{m}$ das selbe Verhältnis $\frac{\text{CC}}{d} = 0.7$ auf wie das photonische Molekül mit der stärksten Kopplung aus Abbildung 7.4 (CC-Abstand $1.9 \mu\text{m}$). Daher lässt sich durch ein Vergleich der PL-Spektren dieser beiden photonischen Moleküle mit identischem $\frac{\text{CC}}{d}$ -Verhältnis, aber unterschiedlicher Größe die Auswirkung eines stärkeren optischen Einschlusses auf das Modenspektrum untersuchen. Während beim größeren photonischen Molekül aus Abbildung 7.4 die Aufspaltung der fundamentalen Moden 1.8 meV beträgt, weist sie für das kleinere photonische Molekül einen deutlich größeren Wert von 4.3 meV auf. Diese verstärkte Aufspaltung kann durch den stärkeren optischen Einschluss bei kleinerem Säulendurchmesser erklärt werden. Der kleinere Durchmesser führt zu einer größeren optischen Feldstärke am Verbindungspunkt der beiden Säulen und damit zu einer stärkeren Kopplung, welche ihrerseits wiederum zu einer stärkeren Aufspaltung der Fundamentalmode führt.

Die Stärke der Kopplung und damit die Aufspaltung der Fundamentalmode hängt folglich nicht nur vom Verhältnis aus CC-Abstand und Säulendurchmesser der gekoppelten Kavitäten und der Breite des Verbindungsstegs, sondern auch wesentlich von den absoluten Abmessungen des photonischen Moleküls ab.

Die Kopplung von zwei Kavitäten miteinander lässt sich ganz allgemein auch als Kopplung von zwei harmonischen Oszillatoren darstellen, welche in unserem Fall die optischen Moden in den jeweiligen Säulenresonatoren repräsentieren. Die photonische Aufspaltung der gekoppelten Moden einer Kavität kann durch $\Delta E = \sqrt{\delta^2 + 4g^2}$ beschrieben werden, wobei δ der Energieunterschied zwischen den optischen Moden der jeweils ungekoppelten Säulenresonatoren und g die Kopplungsstärke der Moden darstellen [230, 278]. Unter Annahme fast identischer Durchmesser der Säulenresonatoren und folglich eines vernachlässigbaren Energieunterschiedes der optischen Moden der isolierten Kavitäten ($\delta \approx 0$) lässt sich g aus der Energieaufspaltung der Moden bei gekoppelten Resonatoren berechnen. In Abbildung 7.5 (b) ist die Kopplungskonstante in Abhängigkeit vom CC-Abstand der photonischen Moleküle aufgetragen. Erwartungsgemäß nimmt die Kopplungsstärke für die fundamentale Mode mit zunehmendem Abstand von 0.9 meV ($\text{CC} = 1.9 \mu\text{m}$) auf 0.26 meV ($\text{CC} = 3.5 \mu\text{m}$) ab. Für die höheren Moden III und V aus Abbildung 7.4 ist die Kopplungskonstante etwa um einen Faktor drei größer. Dies ist vermutlich auf die größere räumliche Ausdehnung der höheren optischen Moden und einem damit verbundenen größeren Überlapp der optischen Felder der beiden Säulenresonatoren zurückzuführen. Als Folge ist ab einem CC-Abstand von etwa $2.8 \mu\text{m}$ für die Moden I-II keine Aufspaltung mehr zu erkennen, wohingegen die Moden III-V selbst bei einem CC-Abstand von $3.5 \mu\text{m}$ noch eine geringe Aufspaltung aufweisen.

Ein interessantes Anwendungsgebiet für solche photonischen Moleküle stellt die effiziente Erzeugung von verschränkten Photonen dar [212]. Da der Durchmesser und der Abstand der Säulenresonatoren unabhängig voneinander einstellbar sind, ist es möglich gleichzeitig den exzitonischen wie auch den biexzitonischen Zerfall in Resonanz mit einer Kavitätsmode zu bringen und somit unter Ausnutzung des Purcell-Effektes die Auskoppelleffizienz deutlich zu erhöhen.

7.2 Elliptische Säulenresonatoren

Für photonische Moleküle mit einem verhältnismäßig geringen CC-Abstand zwischen den beiden Säulenresonatoren (z. B. $CC=1.9\,\mu\text{m}$ in Abbildung 7.4 (b)) ist eine geometrische Ähnlichkeit mit den in Abschnitt 6.2 diskutierten elliptischen Mikrokavitäten vorhanden. Zwar weisen die photonischen Moleküle im Gegensatz zu den elliptischen Säulenresonatoren für jeden CC-Abstand stets eine Taille in der Mitte des Moleküls auf, doch ist diese bei einem kleinem Abstand zwischen den Säulenresonatoren nur noch schwach ausgeprägt. Da gerade die Moleküle mit dem geringsten CC-Abstand die stärkste Kopplung aufweisen, soll in diesem Abschnitt untersucht werden, inwieweit elliptische Säulenresonatoren ebenfalls als System aus gekoppelten Kavitäten betrachtet werden können.

Hierzu wurden die Quantenfilm-Säulenresonatoren mit elliptischem Querschnitt aus Abschnitt 6.2 hinsichtlich der internen optischen Feldverteilung untersucht. Diese experimentellen Ergebnissen werden erneut mit Simulationen der Modenstruktur verglichen. In Abbildung 7.6 (c) ist das PL-Spektrum eines elliptischen Säulenresonators zu sehen (Hauptachsen $a=2.04\,\mu\text{m}$ und $b=3.88\,\mu\text{m}$, $T=4\,\text{K}$). Wegen der aus Abschnitt 6.2 bekannten Aufhebung der Polarisationsentartung der fundamentalen Mode wurde die Messung unter einer Polarisatoreinstellung von 90° aufgenommen. Aus der spektralen Breite von $0.32\,\text{meV}$ der Fundamentalmode bei $2.488\,\text{eV}$ ergibt sich für selbige ein Q-Faktor von $Q_{90^\circ}=7\,900$.

Für die sieben niederenergetischsten Moden ist die ebenfalls unter einer Polarisoreinstellung von 90° gemessene optische Fernfeldverteilung (b) gezeigt, und der aus der Simulation erhaltenen Modenverteilung (a) gegenüber gestellt. Während die Fundamentalmode ein Feldmaximum in der Mitte des elliptischen Säulenresonators besitzt, sind die höheren Moden bevorzugt entlang der längeren Achse der Ellipse ausgerichtet und weisen mit zunehmender Energie eine größere Anzahl an Intensitätsmaxima auf. Die einzelnen Moden lassen sich dabei durch die Anzahl der Maxima entlang der beiden Hauptachsen der Ellipse charakterisieren. Sind die Feldmaxima einer Mode hauptsächlich entlang der kürzeren Hauptachse ausgerichtet, so wird diese Mode bei zunehmender Elliptizität durch den stärkeren optischen Einschluss entlang der kleineren Hauptachse spektral deutlich zu höheren Energien verschoben. Für eine entlang der längeren Hauptachse ausgerichtete Mode wird hingegen der optische Einschluss mit zunehmender Elliptizität schwächer, so dass diese Mode zu kleineren Energien verschoben wird. Insgesamt führt dies zu einer stark von der Elliptizität abhängigen spektralen Reihenfolge der Moden. Dieser Zusammenhang zwischen der spektralen Verschiebung einer Mode bei Änderung der Elliptizität und deren Ausrichtung entlang der Hauptachsen konnte von *Daraei et al.* für das GaAs-Materialsystem sowohl experimentell wie auch durch Simulationen nachgewiesen werden [22].

Vergleicht man die interne optische Feldverteilung der Moden des elliptischen Säulenresonators aus Abbildung 7.6 mit den entsprechenden optischen Feldverteilungen des photonischen Moleküls aus Abbildung 7.2, ist eine Ähnlichkeit deutlich erkennbar. Dementsprechend können

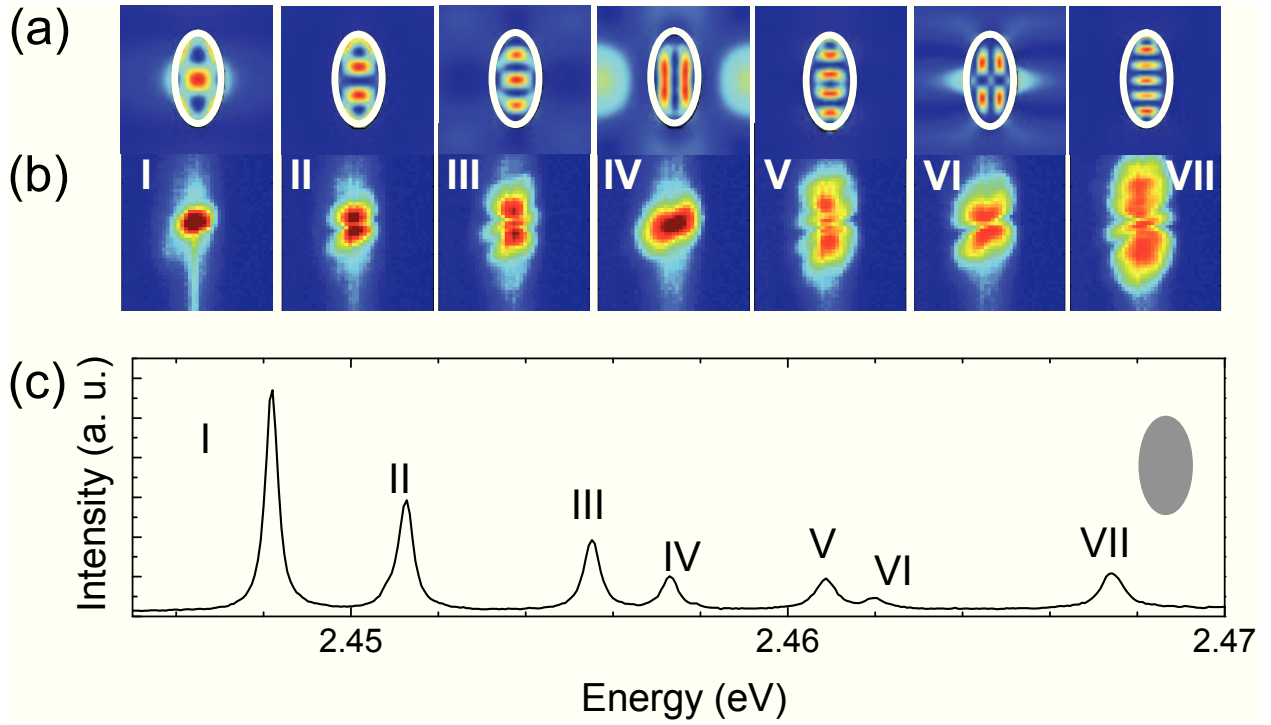


Abbildung 7.6: Berechnete transversal elektromagnetische Feldverteilung (a) und experimentell bestimmte zweidimensionale räumliche Intensitätsverteilung (b) für die sieben niederenergetischsten Moden eines elliptischen Säulenresonators (Hauptachsen $a = 2.04\mu\text{m}$ und $b = 3.88\mu\text{m}$). Die römischen Ziffern entsprechen den Moden aus dem PL-Spektrum in (c). Alle Daten sind unter einer Polarisatoreinstellung von 90° gemessen. $T = 4\text{ K}$.

den optischen Moden des elliptischen Säulenresonators ebenfalls Zustände eines zweiatomigen Moleküls zugeordnet werden. Die Moden I und II können erneut mit den bindenden und antibindenden σ -Orbitale der s-Zustände verbunden werden, wohingegen die Moden III und V (IV und VI) den symmetrischen bzw. antisymmetrischen σ -Orbitalen (π -Orbitalen) der p-Zustände entsprechen. Diese Analogie zwischen den Molekülorbitalen eines zweiatomigen Moleküls und den optischen Moden eines elliptischen Säulenresonators zeigt, dass elliptische Säulenresonatoren ebenfalls als gekoppeltes System zweier Mikrokavitäten beschrieben werden können. Im Vergleich zu den photonischen Molekülen besitzen die elliptischen Säulenresonatoren jedoch zusätzlich den in Kapitel 6.2 beschriebenen Vorteil eines diskreten Polarisationszustandes der Moden.

Als solch ein gekoppeltes System lässt sich für die Ellipsen ebenfalls die Kopplungskonstante bestimmen. Diese wird, in Analogie zum Vorgehen bei den photonischen Molekülen, unter Annahme einer vernachlässigbaren Verstimmung δ der ungekoppelten Resonatoren aus der spektralen Modenaufspaltung ermittelt. Für den in Abbildung 7.6 gezeigten elliptischen Säulenresonator ergibt sich auf diese Weise eine Kopplungskonstante von 1.75 meV . Damit ist die Kopplung bei den elliptischen Säulenresonatoren in etwa doppelt so stark wie die Kopplungskonstante von 0.9 meV eines photonischen Moleküls mit vergleichbaren Abmessungen (siehe Abbildung 7.5). Diese größere Kopplungskonstante der elliptischen Säulenresonatoren kann durch die bekannte Abhängigkeit der Kopplungsstärke von der Breite des Verbindungsstegs erklärt werden [220]. Da bei den elliptischen Säulenresonatoren im Vergleich zu den photonischen Molekülen der Verbindungssteg wesentlich breiter ist, ist auch die Kopplung

der beiden Resonatormoden deutlich stärker ausgeprägt. Dies führt direkt zu einer stärkeren spektralen Aufspaltung der optischen Moden.

7.3 Asymmetrische photonische Moleküle

Wie im ersten Abschnitt gezeigt werden konnte, weisen die optischen Moden bei photonischen Molekülen mit identischen Säulenresonatoren eine symmetrische Modenverteilung auf. Abgesehen von der niederenergetischen Komponente der Fundamentalmode, welche in der Mitte der Struktur lokalisiert ist, sind alle weiteren Moden über die gesamte Kavität delokalisiert. Für eine Anwendung der photonischen Moleküle zur Kopplung von zwei Quantenpunkten in den Zentren der beiden Säulenresonatoren sind jedoch sowohl über das photonische Molekül delokalisierte Moden wie auch in den einzelnen Säulenresonatoren lokalisierte Moden notwendig. Die Moden mit Maxima des optischen Feldes in den Säulenresonatoren würden ein gezieltes Adressieren der einzelnen Quantenpunkte ermöglichen. Um solche lokalisierten optischen Moden zu erhalten, müssen asymmetrische photonische Moleküle hergestellt werden. Eine Möglichkeit ist die Verwendung von zwei Säulenresonatoren mit unterschiedlichen Durchmessern [226]. Ein erster experimenteller Nachweis für lokalisierte optische Moden in asymmetrischen photonischen Molekülen mit unterschiedlichen Durchmessern der beiden Säulenresonatoren konnte für das GaAs-Materialsystem von *Karl et al.* erbracht werden [225]. Hierbei wurde die Intensitätsverteilung des optischen Feldes entlang der Molekülachse für eine Anregung im Zentrum des großen sowie kleinen Säulenresonators untersucht. Es wurden jedoch keine experimentellen Versuche unternommen, die exakte zweidimensionale Modenstruktur zu klären.

Daher sollen in diesem Abschnitt, basierend auf dem II-VI-Materialsystem, photonische Moleküle mit unterschiedlich großen Durchmessern der beiden Säulenresonatoren hinsichtlich ihrer räumlichen internen optischen Modenverteilung untersucht werden. Die Herstellung der photonischen Moleküle erfolgte analog zu denjenigen mit identischen Säulenresonatoren aus derselben Quantenpunkt-Probe. Die geringfügige Abweichung bei der spektralen Position der Grundmode ist auf eine Variation in der Dicke der Kavitätsabstandsschicht über die Probe zurückzuführen.

In Abbildung 7.7 (b) sind die PL-Spektren eines photonischen Moleküls ($d_1 = 3.68 \mu\text{m}$ und $d_2 = 2.05 \mu\text{m}$) für eine Anregung im Zentrum des großen Säulenresonators (durchgezogene Linie) und des kleinen Säulenresonators (gestrichelte Linie) aufgetragen. Um eine genügend starke Kopplung zwischen den beiden Säulenresonatoren zu gewährleisten, wurde für den Verbindungssteg eine Breite von etwa $1.72 \mu\text{m}$ und eine Länge von $0.96 \mu\text{m}$ gewählt. Eine REM-Aufnahme der Struktur ist im eingesetzten Bild zu sehen. In Abbildung 7.7 (a) ist für einige ausgewählte Moden die experimentell erhaltene Fernfeldverteilung bei einer Anregung auf dem Verbindungssteg des photonischen Moleküls gezeigt. Die Ausrichtung des photonischen Moleküls ist schematisch und nicht maßstabsgetreu am linken Rand skizziert.

Betrachtet man das optische Fernfeld der Moden, so sind sowohl Moden mit einer symmetrischen Intensitätsverteilung (Moden III + VI) wie auch Moden mit einer asymmetrischen Verteilung des optischen Feldes (Moden II + V) zu erkennen. Als einzige Mode besitzt die Fundamentalmode eine starke räumliche Lokalisierung der Feldintensität. Die Mode II weist hingegen eine stark asymmetrische Intensitätsverteilung mit einer wesentlich höheren Intensität im oberen Bereich auf. Bei bekannter Ausrichtung des photonischen Moleküls entsprechend der Skizze am linken Bildrand von Abbildung 7.7 (a) lässt sich aus der vergrößerten

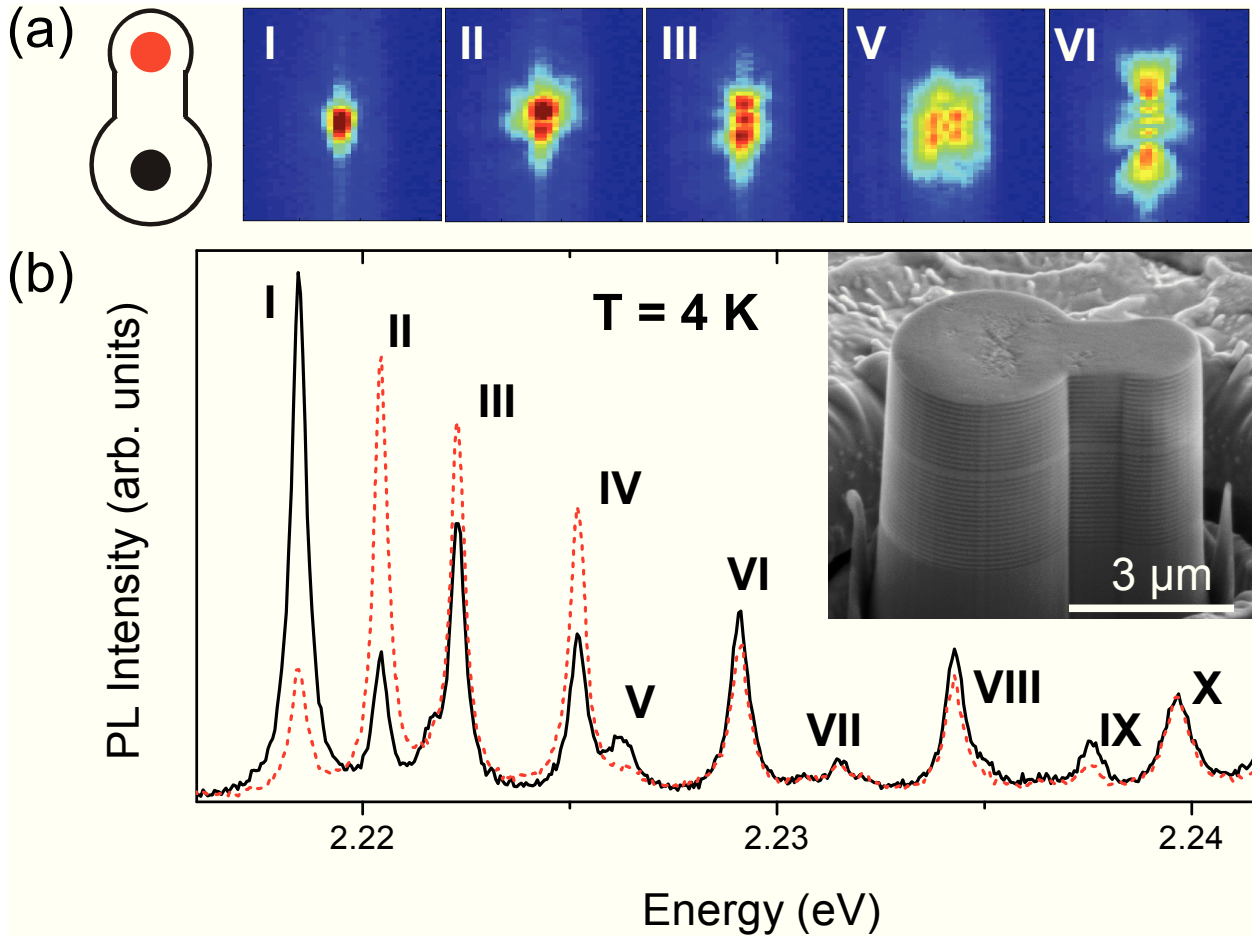


Abbildung 7.7: (a) Schematische Darstellung des photonischen Moleküls (links) und gemessene Feldverteilung der im Spektrum entsprechend beschrifteten Moden für das im eingesetzten REM-Bild in (b) gezeigte photonische Molekül mit unterschiedlichen Durchmessern der beiden Säulenresonatoren. (b) PL-Spektren des photonischen Moleküls für eine Anregung im Zentrum des größeren (durchgezogene Linie) sowie kleineren (gestrichelte Linie) Säulenresonators. Die beiden Anregungspositionen sind in der schematischen Darstellung in Teilbild (a) verdeutlicht.

Gegenüberstellung der Moden I und II in Abbildung 7.8 eine Zuordnung der räumlichen Positionen der Moden zu den beiden Säulenresonatoren treffen. Die fundamentale Mode besitzt ihr Intensitätsmaximum des optischen Feldes im Bereich des Säulenresonators mit dem größeren Durchmesser, die erste höhere Mode im Bereich des kleineren Säulenresonators. Der optische Einschluss des kleineren Säulenresonators ist jedoch nicht ausreichend, um die Mode II komplett auf diesen zu beschränken. Dies hat zur Folge, dass sich etwa 25 % der Gesamtintensität im Bereich des Verbindungsstegs befinden und sich dadurch die experimentell bestimmte Fernfeldverteilung ergibt. Dennoch kann diese Mode in guter Näherung als auf den kleinen Säulenresonator lokalisiert betrachtet werden. Die höheren Moden (III + VI sowie im Fernfeld nicht gezeigt die Moden VII - X) weisen im Gegensatz dazu eine über das gesamte Molekül delokalisierte Intensitätsverteilung auf. Insgesamt existieren somit in einem photonischen Molekül sowohl in den einzelnen Säulenresonatoren lokalisierte wie auch über das gesamte Molekül delokalisierte Moden.

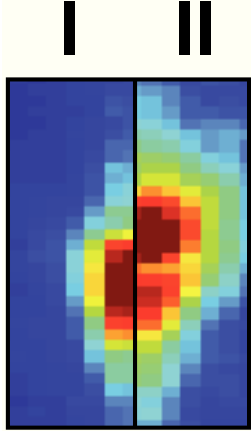


Abbildung 7.8: Vergrößerte und vergleichende Darstellung der Fernfeldverteilung der Mode I (linkes Teilbild) und Mode II (rechtes Teilbild) aus Abbildung 7.7.

Eine Bestätigung dieser aus dem Fernfeld bestimmten internen Verteilung des optischen Feldes kann durch orts aufgelöste PL-Messungen erbracht werden. Wie bereits in Abschnitt 7.1.1 erläutert, werden diejenigen Moden bevorzugt angeregt, welche am Ort der Anregung ein Maximum des optischen Feldes aufweisen. Bei einer Anregung im Zentrum des größeren Säulenresonators (durchgezogene Linie) wird folglich Mode I verstärkt angeregt und besitzt in Abbildung 7.7 (b) entsprechend die höchste PL-Intensität. Entsprechendes gilt für eine Anregung im Zentrum des kleineren Säulenresonators (gestrichelte Linie) und Mode II. Für die höheren Moden ist aufgrund ihrer Delokalisierung über das gesamte photonische Molekül nur eine geringe Änderung der PL-Intensität mit dem Anregungsort zu erkennen. Eine Ausnahme hiervon bilden die Mode V, für welche das Fernfeldspektrum eine starke Lokalisierung im größeren Säulenresonator aufzeigt. In Übereinstimmung hiermit ist diese Mode auch nur bei einer Anregung im größeren Säulenresonator merklich ausgeprägt. Für eine Anregung im kleineren Säulenresonator ist sie nur als schwache Schulter auf der höherenergetischeren Flanke der Mode IV zu erkennen. Mode IV (im Fernfeld nicht gezeigt) weist im Gegensatz dazu eine höhere Feldverteilung im kleineren Säulenresonator auf und zeigt entsprechend für eine Anregung auf diesem die höchste Intensität.

Ein Anwendungsgebiet dieser asymmetrischen photonischen Moleküle könnte, wie bereits erwähnt, in der schaltbaren Kopplung zweier räumlich um einige Mikrometer voneinander getrennten Quantenpunkte liegen. Ausgangspunkt hierzu ist ein photonisches Molekül, welches zwei Quantenpunkte QD1 und QD2 mit den Emissionsenergien E_{QD1} und E_{QD2} im Zentrum des großen bzw. kleinen Säulenresonators besitzt. Ein solches photonisches Molekül ist in Abbildung 7.9 (a) skizziert. Das Modenspektrum eines solchen asymmetrischen photonischen Moleküls entspricht qualitativ dem in Abbildung 7.7 gezeigten. Durch eine geeignete Wahl der Säulendurchmesser lässt sich erreichen, dass die spektrale Lage von Mode I der Emissionsenergie E_{QD1} des Quantenpunktes im großen Säulenresonator entspricht [211–213]. Im ersten Schritt in Abbildung 7.9 wird der Quantenpunkt QD1 resonant durch einen Laser angeregt. Da die Mode I im großen Säulenresonator lokalisiert ist, kann dieser Quantenpunkt nicht mit QD2 in Wechselwirkung treten. Der Quantenpunkt QD2 verbleibt ohne äußere Anregung in seinem Grundzustand. Sollen die beiden Quantenpunkte miteinander in Wechselwirkung treten, so kann dies aufgrund der räumlichen Entfernung von mehreren Mikrometern nur durch eine delokalisierte optische Mode geschehen. Hierzu wird im zweiten Schritt die Emissionsenergie E_{QD1} von Quantenpunkt QD1, z. B. durch die Änderung einer äußeren Spannung (siehe Quantum Confined Stark Effekt in Abschnitt 2.1.2), in Resonanz mit Mode III gebracht. Da diese Mode über das gesamte photonische Molekül delokalisiert

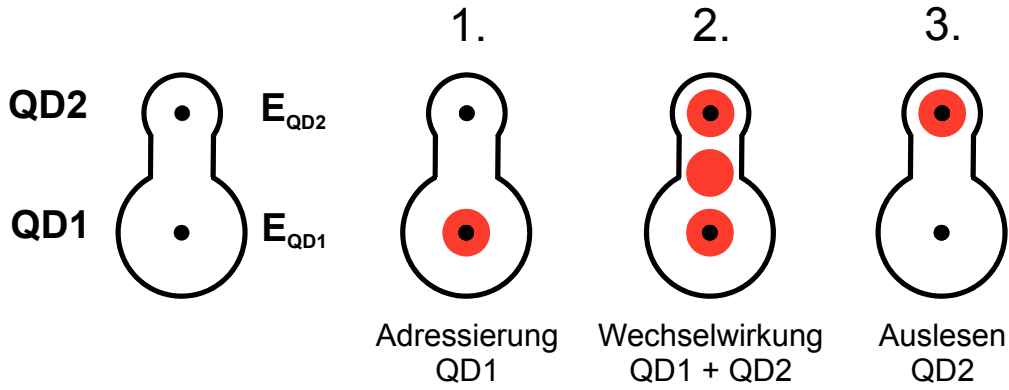


Abbildung 7.9: Möglichkeit zur schaltbaren Kopplung zweier räumlich getrennter Quantenpunkte über delokalisierte Moden. Die schwarzen Kreise stehen für die Quantenpunkte, die roten Kreise für die Feldmaxima der optischen Moden aus Abbildung 7.7.

ist, können die beiden Quantenpunkte QD1 und QD2 über das optische Feld miteinander in Wechselwirkung treten. Auf diese Weise kann Energie von QD1 auf QD2 übertragen werden, so dass sich QD1 im Grund- und QD2 in einem angeregten Zustand befinden. Wird die Wechselwirkung anschließend wieder abgeschaltet, so verbleiben die beiden Quantenpunkte ohne Wechselwirkung miteinander in ihren Zuständen. Das Auslesen der Information aus Quantenpunkt QD2 ist am effizientesten, wenn dieser in Resonanz zu Mode II ist. Da diese Mode im kleineren Säulenresonator lokalisiert ist, besteht keine Wechselwirkung mit QD1. Auf die hier beschriebene Weise ist durch ein asymmetrisches photonisches Molekül eine schaltbare Wechselwirkung zwischen zwei räumlich getrennten Quantenpunkten denkbar.

Insgesamt konnte in diesem Abschnitt erstmalig die interne Modenverteilung von asymmetrischen photonischen Molekülen räumlich aufgelöst dargestellt werden. Somit stellen die hier vorgestellten Ergebnisse einen wichtigen Schritt auf dem Weg zu einer schaltbaren Kopplung zwischen zwei räumlich getrennten Quantenpunkten dar.

7.4 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurde die interne Verteilung des optischen Feldes in Systemen aus gekoppelten Säulenresonatoren in Abhängigkeit von Geometrie und Kopplungsstärke untersucht.

Für ein symmetrisches photonisches Molekül konnte die Aufspaltung der Moden der einzelnen Säulenresonatoren und die Entwicklung neuer optischer Zustände beobachtet werden. Der Modenverteilung konnten dabei, in Analogie zur Elektronendichteverteilung eines zweiatomigen Moleküls, bindende und antibindende Zustände zugeordnet werden. Für die Kopplungsstärke wurde zusätzlich zu der aus dem GaAs-System bekannten Abhängigkeit vom Verhältnis $\frac{CC}{d}$ bei identischem Verhältnis erstmalig noch eine Abhängigkeit von der absoluten Größe der Struktur nachgewiesen. Über eine alternative Betrachtung als System aus zwei gekoppelten Oszillatoren konnte eine Kopplungskonstante von maximal 2.6 meV für das photonische Molekül mit dem geringsten CC-Abstand bestimmt werden.

Im zweiten Abschnitt wurde die Modenverteilung eines elliptischen Säulenresonators untersucht. Dabei wurden elliptische Säulenresonatoren erstmalig als gekoppeltes System zweier Säulenresonatoren mit einem, im Vergleich zu den photonischen Molekülen, breiten und

kurzen Verbindungssteg aufgefasst. Dies ermöglichte die interne Modenverteilung ebenfalls in Analogie zu einem zweiatomigen Molekül zu betrachten und den optischen Zuständen analoge Zustände der Elektronendichteverteilung zuzuordnen. Im Gegensatz zu den photonischen Molekülen weisen die elliptischen Säulenresonatoren jedoch eine wesentlich stärkere Kopplung mit einer etwa doppelt so großen Kopplungskonstanten und zudem noch die in Kapitel 6.2 diskutierte Polarisationsaufspaltung auf.

Im letzten Abschnitt dieses Kapitels wurde erstmalig eine räumlich aufgelöste Darstellung der Modenverteilung in asymmetrischen photonischen Molekülen erreicht und dadurch die Koexistenz von lokalisierten und delokalisierten optischen Moden in einer einzigen Mikrokavität gezeigt. Die Ergebnisse aus den Fernfeldmessungen konnten dabei durch den Vergleich der Intensitäten verschiedener Moden aus ortsabhängigen PL-Messungen bestätigt werden. Dieser Nachweis der Koexistenz von lokalisierten und delokalisierten optischen Moden in einer Mikrokavität stellt einen wichtigen Schritt auf dem Weg zu einer schaltbaren Kopplung von zwei räumlich getrennten Quantenpunkten durch ein optisches Feld dar. Damit bilden die hier gezeigten Ergebnisse eine wichtige Grundlage für weitere Entwicklungen auf dem Gebiet der Quanteninformationsverarbeitung.

8 InGaN-Quantenpunkt-Mikrokavitäten

Als Alternative zu dem in den Kapiteln 5 bis 7 behandelten II-VI-Materialsystem bietet sich das GaN-System an, mit welchem ebenfalls eine Emission im blau-grünen Spektralbereich erreicht werden kann. Bisher hat dieses Materialsystem allerdings noch nicht die Reife des II-VI-Materialsystems erreicht, so dass die Qualität der Mikroresonatoren sowie die Herstellung von Quantenpunkten und insbesondere deren Einbettung in eine Kavität noch eine Herausforderung darstellen.

Im Folgenden werden zunächst die Eigenschaften der planaren Quantenpunkt-Mikrokavitäten diskutiert, welche von *Heiko Dartsch* und *Christian Tessarek* am *Institut für Festkörperphysik* hergestellt wurden (siehe Abschnitt 4.1.2 bzw. 4.1.2). Dabei wird die experimentell ermittelte Reflektivität der planaren Kavität mit einer Simulationen derselben sowie dem entsprechenden PL-Spektrum verglichen.

Im zweiten Abschnitt erfolgen systematische Studien an monolithisch hergestellten InGaN-Quantenpunkt-Säulenresonatoren, welche aus der planaren Probe prozessiert wurden. Dabei werden sowohl die Abhängigkeit der spektralen Lage der Moden vom Durchmesser der Säulenresonatoren wie auch die verstärkte Auskopplung der Emission aus einzelnen Quantenpunkten durch Mikrokavitäten untersucht.

8.1 Optische Eigenschaften der planaren Kavität

Die im Folgenden untersuchte, monolithisch hergestellte Probe besteht aus einer GaN/AlInN-Mikrokavität mit 40 unteren und 20 oberen Bragg-Spiegelpaaren. Als aktives Material wurde im Zentrum der GaN- λ -Kavität eine Schicht aus InGaN-Quantenpunkten mit einer Dichte von etwa $5 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ und Durchmessern im Bereich von 5 nm eingebettet [O5]. Die Herstellung der Mikrokavität und das Wachstum der InGaN-Quantenpunkte sind in Abschnitt 4.1.2 ausführlich beschrieben.

In Abbildung 8.1 (a) ist die Reflektivität der planaren Struktur im relevanten Spektralbereich um das Stoppband von 2.30 eV bis 2.85 eV zu sehen. Der von *Dr. C. Kruse* mit einer limitierten spektralen Auflösung von 1 nm bei Raumtemperatur durchgeführten Messung ist eine von *Dr. K. Sebald* mit Hilfe des CAMFR-Paketes [74, 75] errechnete Simulation gegenübergestellt. Dabei wurden für die Simulation mittels TEM erhaltene Schichtdicken sowie eine Brechungsindexdispersion von GaN [279] bzw. $\text{Al}_{0.82}\text{In}_{0.18}\text{N}$ [280] aus der Literatur verwendet. Die Absorptionsverluste der AlInN-Schichten wurden aus Ellipsometrie-Messungen an ähnlich dicken Schichten ermittelt [280].

Die Simulation zeigt ein Stoppband von etwa 190 meV Breite mit einer maximalen Reflektivität von knapp 95 %. Aus der spektralen Lage bei 2.503 eV sowie der Breite der planaren Resonanz von 7 meV (FWHM) ergibt sich die Güte der Kavität zu $Q = E/\Delta E = 340$. Ein Vergleich mit der experimentell bestimmten Reflektivität ergibt eine recht gute Übereinstimmung für die Lage der Resonanz und die Oszillationen sowohl nieder- wie auch hochenergetisch des Stoppbandes. Insbesondere bei den Oszillationen wird jedoch die geringe spektrale Auflösung

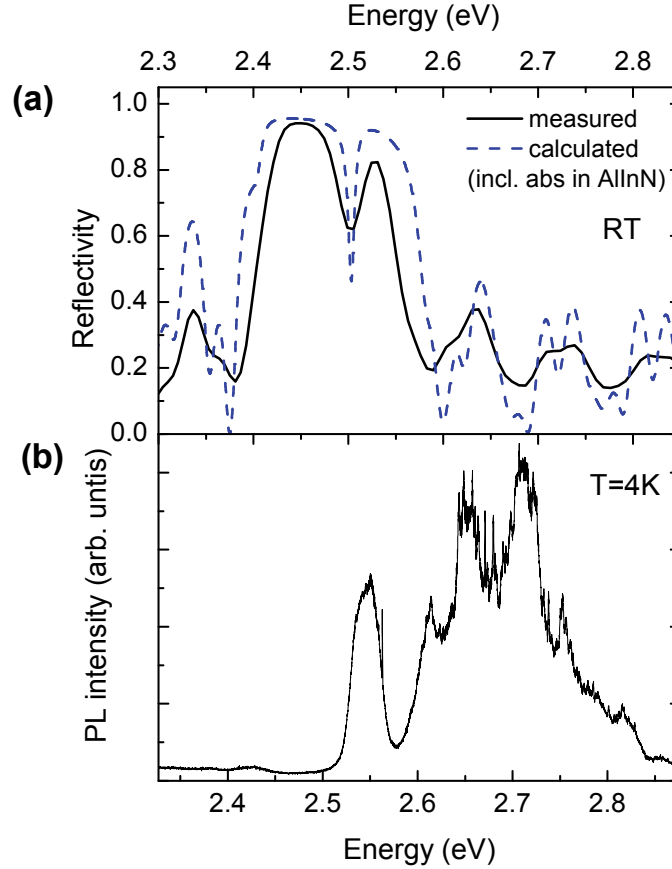


Abbildung 8.1: (a) Reflektivität der planaren GaN-basierten Mikrokavität gemessen bei Raumtemperatur (durchgezogene Linie) sowie unter Berücksichtigung der Absorption in AlInN mittels Transfer-Matrix-Methode berechnete Reflektivität (gestrichelte Linie). (b) μ PL -Spektrum der planaren Kavität mit der Kavitätsresonanz bei 2.546 eV ($T = 4$ K).

der Messung deutlich, welche die in der Simulation erkennbaren Doppelstrukturen nur noch andeuten kann. Die gegenüber der Simulation geringfügig verminderte Reflektivität der experimentellen Messung von 94 % liegt vermutlich in zusätzlichen Absorptionsverlusten neben der Absorption in den AlInN-Schichten begründet. Die Ursache der gegenüber der Simulation verbreiterten Resonanz in der Messung basiert auf der relativ großen beleuchteten Fläche bei der Makro-Reflexionsmessung, durch welchen über einen größeren Probenbereich und damit auch über leicht unterschiedliche spektrale Positionen der Kavitätsresonanz gemittelt wurde. Ein Photolumineszenzspektrum der planaren Quantenpunktmikrokavität ist in Abbildung 8.1 (b) gezeigt. Hierzu wurde die Probe mit einer Photonenenergie von 3.05 eV, welche weit oberhalb der hochenergetischen Kante des Stoppbandes und knapp unterhalb der Bandkante von GaN liegt, angeregt ($T = 4$ K). Messungen an einer Referenzprobe ohne Kavität ergaben eine näherungsweise gaußförmige Verteilung der Emission des Quantenpunktensembles mit einer FWHM von 200 meV zentriert um eine Energie von 2.7 eV, was mit der hier beobachteten Verteilung übereinstimmt. Die Photolumineszenz des Quantenpunktensembles im Bereich von 2.6 eV bis 2.8 eV setzt sich aus einer Überlagerung vieler, spektral scharfer Emissionslinien einzelner Quantenpunkte zusammen. Einige dieser Emissionslinien sind intensiv genug, um einzeln aufgelöst zu werden, und besitzen eine Linienbreite im Bereich des spektralen Auflösungsvermögens des experimentellen Aufbaus.

Die PL-Intensität der in die Mikrokavität eingebetteten Quantenpunkte wird durch die Transmission der Braggspiegel moduliert. So ist bei einer Energie von 2.546 eV die Emission durch die Kavitätsresonanz mit einer spektralen Breite von 30 meV zu erkennen, ausgeleuchtet durch die niederenergetische Seitenbande des Quantenpunktensembles. Aufgrund der Temperaturabhängigkeit des Brechungsindex ist die Resonanz gegenüber der Reflexionsmessung bei Raumtemperatur um 43 meV zu höheren Energien verschoben.

Die hier für die planare monolithisch hergestellte Kavität erzielten Q-Faktoren von 340 sind zwar geringer als die Güte in bisherigen Arbeiten zu Nitrid-basierten Mikrokavitäten, jedoch wurden die bisherigen Arbeiten entweder in einem anderen Spektralbereich oder mit hybriden Kavitäten durchgeführt. So wurden die Q-Faktoren von 2 800 für planare monolithische AlInN/GaN-Mikrokavitäten im blauen Spektralbereich mit einem höheren Indexkontrast erzielt [195], wohingegen die höchsten bisher berichteten Q-Faktoren von Nitrid-basierten Mikrokavitäten von 6 400 für eine hybride Kavität mit oberem dielektrischen Spiegel erreicht wurden [281]. Zudem konnte bisher lediglich eine weitere Gruppe über die erfolgreiche Einbettung von InGaN-Quantenpunkte in eine Kavität berichten, welche jedoch ebenfalls hybride Strukturen verwendete [282].

Mit den hier vorgestellten Untersuchungen konnten erstmals InGaN-Quantenpunkte in monolithisch hergestellten Nitrid-basierten Mikrokavitäten nachgewiesen werden. Die spektrale Breite der Quantenpunktemission war dabei nur durch das experimentelle Auflösungsvermögen begrenzt. Damit bilden die dargestellten Ergebnisse einen wichtigen Schritt für die Untersuchung von Kopplungsphänomenen im Bereich der Licht-Materie-Wechselwirkung an Nitrid-basierten Mikrokavitäten.

8.2 Resonante Moden in Säulenresonatoren

Der aus der Simulation der Reflektivität erhaltene Q-Faktor der planaren Kavität von 340 ist viel versprechend für die Ausnutzung von Kopplungsphänomenen in Mikrokavitäten, mit welchen z. B. eine Erhöhung der Auskoppelleffizienz von einzelnen Quantenpunkten erreicht werden kann. Um diese Kopplung zwischen Quantenpunktemission und Resonatormoden zu studieren, wurden mithilfe der FIB-Prozessierung (siehe Kapitel 4.2) aus der planaren Probe Säulenresonatoren mit Durchmessern im Bereich von 1.4 μm bis 3.6 μm strukturiert.

In Abbildung 8.2 sind die PL-Spektren von vier Säulenresonatoren in einem Bereich von ± 50 meV um die spektrale Lage der Kavitätsresonanz des planaren Resonators aufgetragen. Durch den dreidimensionalen optischen Einschluss in den Säulenresonatoren entwickeln sich aus dem breiten Modenkontinuum der planaren Resonanz diskrete, spektral klar voneinander getrennte Moden. Für den kleinsten Säulenresonator mit einem Durchmesser von 1.4 μm liegt die Grundmode bei einer spektralen Position von 2.535 eV. Höhere Moden lassen sich bei 2.556 eV sowie als Doppelpack bei 2.588 eV ausmachen. Aus der spektralen Breite der Grundmode von 9.1 meV ergibt sich der Q-Faktor zu 280.

Ein Vergleich der spektralen Position der Grundmode zwischen Säulenresonatoren mit unterschiedlichem Durchmesser zeigt die bekannte und von Formel 2.19 beschriebene Verschiebung der Moden zu höheren Energien bei abnehmendem Durchmesser. Die Zunahme des freien Spektralbereichs zwischen den einzelnen Moden mit abnehmendem Durchmesser der Kavität konnte ebenfalls bestätigt werden. Den experimentellen Daten sind Berechnungen der Transmission für die jeweiligen Säulenresonatoren gegenüber gestellt (gestrichelte Linien). Die Berechnungen basieren auf einer vektoriellen Transfermatrix-Methode und wurden von

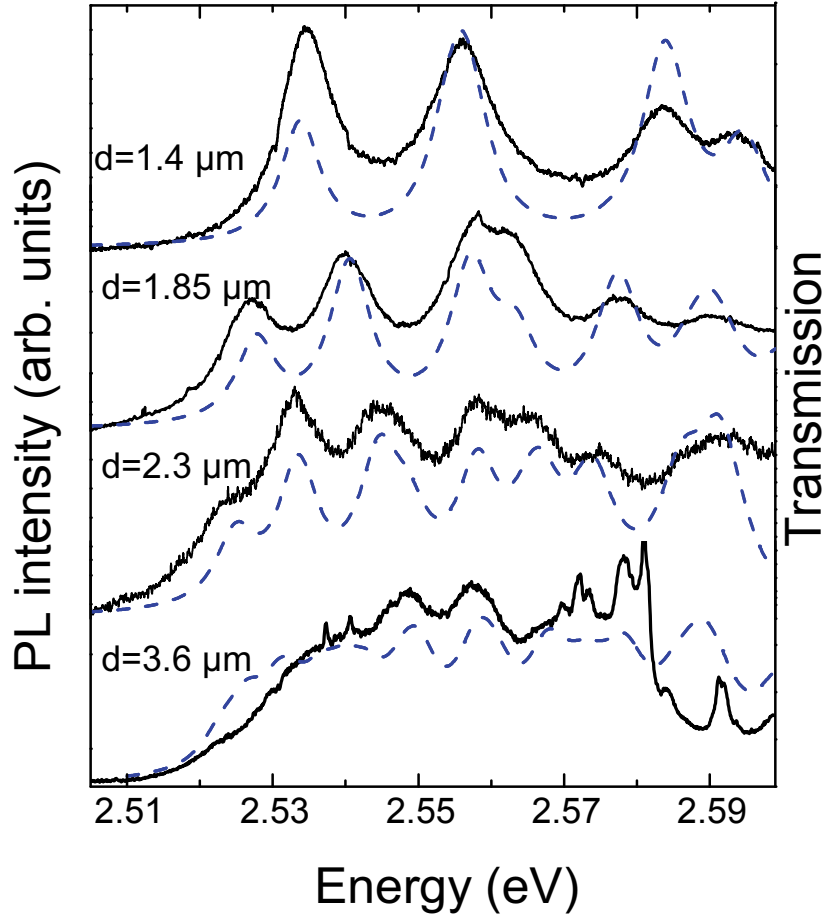


Abbildung 8.2: Gemessene PL-Spektren (durchgezogene Linie) und berechnete Transmissionsspektren (gestrichelte Linie, Rechnung M. Florian) der GaN-basierten Säulenresonatoren mit den angegebenen Durchmessern d bei $T = 4$ K.

M. Florian am Institut für Theoretische Physik der Universität Bremen durchgeführt (Details in [283]). Als Parameter fanden, wie bei der Simulation der Reflexion, die experimentell erhaltenen Daten für die Brechungsindexdispersion, die Absorptionskoeffizienten, die Schichtdicken der DBR-Spiegel sowie die Durchmesser der Säulenresonatoren Verwendung. Die Berechnungen reproduzieren die experimentellen Ergebnisse hinsichtlich der Lage der einzelnen Moden, des freien Spektralbereichs zwischen den Moden sowie des Intensitätsverhältnisses der Resonanzmoden sehr gut. Das Gesamtspektrum ergibt sich aus der Überlagerung der einzelnen, spektral verbreiterten Resonanzen und spiegelt den experimentell ermittelten Gesamtverlauf der Photolumineszenzmessung wider. Bei dieser Gegenüberstellung ist jedoch zu beachten, dass in die experimentell bestimmte Photolumineszenz sowohl das Transmissionsspektrum der Kavität wie auch die Kopplung des Quantenpunktensembles an die Moden eingeht. Dadurch sind zwar die spektrale Lage der Moden, jedoch nicht ihre Intensitäten mit den Simulationen vergleichbar.

Aus dem berechneten Transmissionsspektrum der fundamentalen Mode des Säulenresonators mit einem Durchmesser von $1.4\ \mu\text{m}$ lässt sich für die spektrale Breite (FWHM) ein Wert von $6.6\ \text{meV}$ bestimmen. Zusammen mit der Lage der Mode bei $2.535\ \text{eV}$ ergibt sich daraus ein Q-Faktor von 380. Dieser Wert ist vergleichbar mit dem aus den Reflexionsspektren

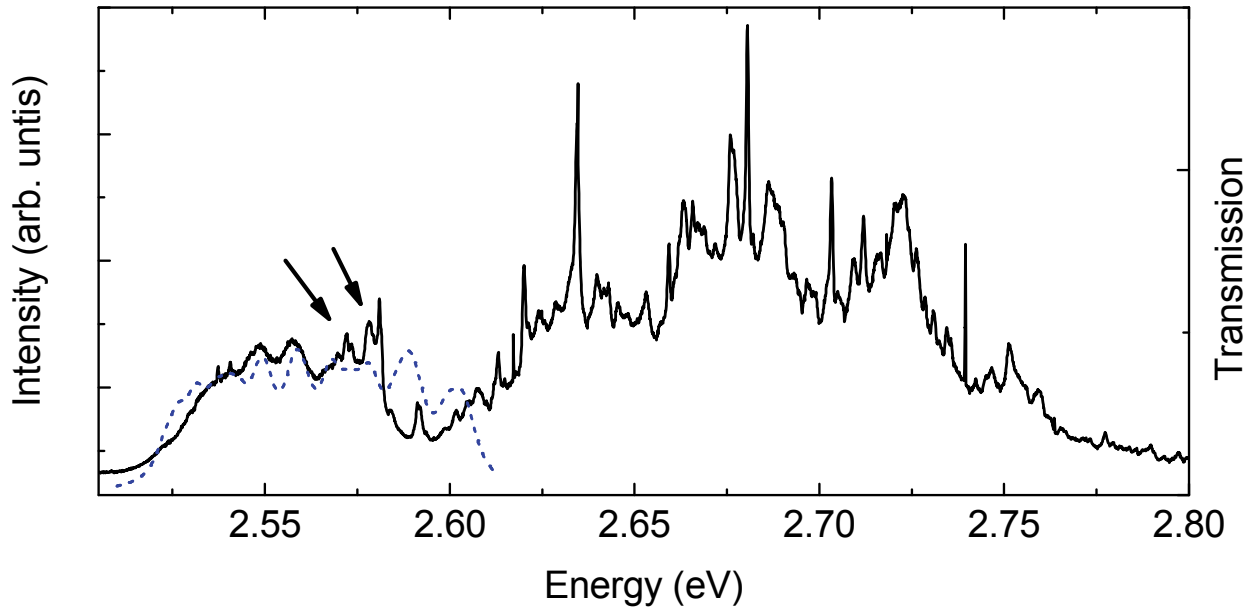


Abbildung 8.3: μ PL-Spektrum eines Säulenresonators mit einem Durchmesser von $d = 3.6 \mu\text{m}$ einschließlich der PL des InGaN-Quantenpunktensembles (durchgezogene Linie) sowie die berechnete Transmission (gestrichelte Linie, Rechnung M. Florian) bei $T = 4 \text{ K}$.

berechneten Wert und nur geringfügig höher als der experimentell bestimmte Q-Faktor. Vergleicht man die Intensitäten der höheren Moden für die verschiedenen Säulenresonatoren aus Abbildung 8.2 miteinander, so fällt eine im Vergleich zur Messung überhöhte Intensität bei den Berechnungen der Transmission auf. Einzige Ausnahme hiervon sind die beiden höheren Moden bei einer spektralen Position von 2.568 eV bzw. 2.577 eV des Säulenresonators mit einem Durchmesser von $3.6 \mu\text{m}$. Das Photolumineszenzspektrum dieses Säulenresonators ist daher in Abbildung 8.3 über den erweiterten spektralen Bereich von 2.505 eV bis 2.8 eV zusammen mit der berechneten Transmission dargestellt. Die entsprechenden überhöhten und durch Pfeile gekennzeichneten Moden sind in der Messung von spektral scharfen Emissionslinien überlagert, welche auf die Kopplung der Emission einzelner Quantenpunkte an diese Moden zurückgeführt werden können. Diese Kopplung bedingt eine verstärkte Auskopplung der Emission aus den Quantenpunkten. Dementsprechend ist die Intensität der Emission im Vergleich zu Quantenpunkten mit einer spektralen Emission in der niederenergetischen Seitenbande des Quantenpunktensembles um 2.61 eV deutlich überhöht. Damit stellen diese Messungen den ersten experimentellen Nachweis einer durch die Ankopplung an Kavitätsmoden verstärkten Auskopplung für InGaN-Quantenpunkte in monolithischen Nitrid-basierten Mikrokavitäten dar. Eine solche verstärkte Auskopplung der Quantenpunkt-emission ist insbesondere für eine effiziente Lichterzeugung ein wichtiges Merkmal.

Die maximale Auskopplung der Quantenpunkt-emission ergibt sich für den Fall, dass der Quantenpunkt einerseits räumlich im Maximum des Lichtfeldes liegt und andererseits spektral im Maximum der Mode emittiert. Die räumliche Lage des Emitters liegt in prozessierten Säulenresonatoren fest, der spektrale Abstand zwischen Kavitätsmode und Quantenpunkt kann jedoch wie bereits in Abschnitten 2.4.1 und 6.2.2 dargestellt durch eine Variation der Temperatur verändert werden. Aufgrund der mit zunehmender Temperatur geringer werdenden Intensität der Quantenpunkt-emission ist die maximal mögliche spektrale Ver-

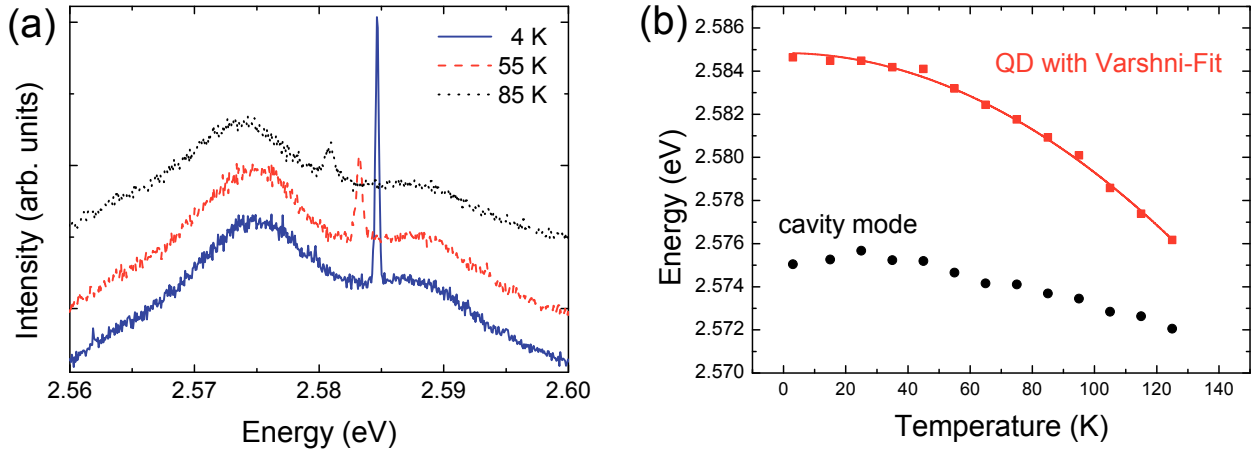


Abbildung 8.4: (a) Von einem Quantenpunkt spektral überlagertes Spektrum zweier Moden eines Säulenresonators mit einem Durchmesser von $1.98 \mu\text{m}$ für verschiedene Temperaturen (Spektren vertikal verschoben). (b) Abhängigkeit der Quantenpunktemission (Quadrate) sowie der spektralen Lage der Kavitätsmode (Kreise) von der Temperatur. Die durchgezogene Linie stellt eine Anpassung der QD-Emission nach Formel 2.3 mit den Fit-Parametern $\alpha = (1.80 \pm 0.04) \cdot 10^{-4} \text{ eV/K}$ und $(\beta = 208 \pm 7) \text{ K}$ sowie der Bandlücke bei 0 K von $E_0 = 2.585 \text{ eV}$ dar.

schiebung durch der Aktivierungsenergie des Quantenpunktes begrenzt, welche ein Maß für die Temperaturstabilität der Quantenpunktemission ist.

In Abbildung 8.4(a) ist das Spektrum zweier Moden eines Säulenresonators mit einem Durchmesser von $1.98 \mu\text{m}$ für verschiedene Temperaturen gezeigt. Neben den beiden Moden ist auch die spektral scharfen Emissionslinie eines einzelnen Quantenpunktes bei etwa 2.585 eV ($T = 4 \text{ K}$) zu sehen. Eine Erhöhung der Proben temperatur von 4 K (durchgezogene Linie) auf 55 K (gestrichelt) hat die erwartete spektrale Verschiebung der Quantenpunktemission zur Folge. Obwohl die Resonatormode auch eine kleine spektrale Verschiebung zeigt, besitzt die Quantenpunktemission aufgrund ihrer stärkeren spektralen Verschiebung bei 55 K einen größeren spektralen Überlapp mit der niederenergetischeren Kavitätsmode als dies bei 4 K der Fall war. Diese relative Verschiebung wird aus Abbildung 8.4(b) deutlich, in welcher die spektralen Positionen von Quantenpunktemission (Quadrate) und fundamentaler Mode (Kreise) in einem Bereich von 4 K bis 125 K gegen die Temperatur aufgetragen sind. Die durchgezogene Linie stellt eine Anpassung der Temperaturabhängigkeit der Quantenpunktemission mit dem theoretisch zu erwartenden Verlauf nach Varshni (Formel 2.3) dar. Die Emissionslinie des Quantenpunktes konnte bis zu einer Temperatur von 125 K verfolgt werden, bei welcher die Emission nur noch als schwache Schulter auf den Moden zu erkennen ist. Der stärkeren Auskopplung der QD-Emission aufgrund der zunehmenden Kopplung an eine Kavitätsmode steht jedoch eine Abnahme der QD-Emission durch eine zunehmende thermische Anregung der Exzitonen und damit einhergehende schwächere Lokalisierung in den Quantenpunkten gegenüber. Aufgrund des relativ großen spektralen Abstandes zwischen Quantenpunktemission und Kavitätsmode von knapp 10 meV bei 4 K ist eine Resonanz erst bei einer Temperatur von etwa 160 K zu erwarten. Da die Quantenpunktemission jedoch nur bis zu einer Temperatur von 125 K verfolgt werden konnte, war es nicht möglich, die QD-Emission mit der Mode in Resonanz zu bringen. Die

prinzipielle Möglichkeit, die Emission eines einzelnen InGaN-Quantenpunktes innerhalb einer monolithischen Nitrid-basierten Kavität durch Temperaturänderung relativ zur spektralen Position einer Kavitätsmode zu verschieben, konnte jedoch nachgewiesen werden. Durch eine Optimierung des spektralen Überlapps zwischen Quantenpunktemission und Resonatormode steht dem GaN-Materialsystem mit seinen spezifischen Vorteilen damit zukünftig der gesamte Bereich der Kavitäts-Quanten-Elektrodynamik offen.

8.3 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurden erstmalig die optischen Eigenschaften von monolithisch hergestellten GaN-basierten Mikroresonatoren mit einer aktiven Schicht aus InGaN-Quantenpunkten systematisch untersucht. Dieses Materialsystem stellt damit eine Alternative zur Erzeugung einer Emission aus einzelnen Quantenpunkten im blau-grünen Spektralbereich zu den bisher beschriebenen II-VI-basierten Mikrokavitäten dar.

Im ersten Abschnitt wurde die planare Probe hinsichtlich ihrer Reflektivität und Photolumineszenz charakterisiert. In μ PL-Messungen konnten einzelne spektral scharfe Linien des Quantenpunktensembles detektiert werden, welche aufgrund ihrer hohen Intensität einzeln aufgelöst werden konnten. Aus einem Vergleich der gemessenen Reflektivität mit Simulationen konnten für die planare Probe Q-Faktoren von 340 ermittelt werden.

Im zweiten Abschnitt wurden für Studien zu einer verstärkten Auskopplung aus den Quantenpunkten Säulenresonatoren mit unterschiedlichen Durchmessern hergestellt. Für diese Säulenresonatoren konnten, in Übereinstimmung mit Simulationen, die charakteristischen Abhängigkeiten der spektralen Position der Moden vom Durchmesser nachgewiesen und experimentell ein maximaler Q-Faktor vom 280 bestimmt werden.

Für spektral in eine Mode der Säulenresonatoren emittierende Quantenpunkte konnte eine deutlich überhöhte Auskopplung beobachtet werden. Zudem wurde die Möglichkeit demonstriert, den spektralen Überlapp zwischen Quantenpunktemission und Kavitätsmode durch eine Anpassung der Temperatur zu optimieren, wobei die Quantenpunktemission bis zu einer Temperatur von 125 K verfolgt werden konnte. Damit steht die Temperaturstabilität in guter Übereinstimmung mit ebenfalls am *Institut für Festkörperphysik* der Universität Bremen durchgeführten Elektrolumineszenzmessungen an einzelnen InGaN-Quantenpunkten [284].

Insgesamt wurden in diesem Kapitel erstmalig die spektralen Eigenschaften von monolithisch hergestellten Säulenresonatoren mit einer aus InGaN-Quantenpunkten bestehenden aktiven Schicht vorgestellt. Die gezeigte Erhöhung der Auskoppelleffizienz der Emission einzelner InGaN-Quantenpunkte durch monolithische Mikroresonatoren ist ein wichtiger Grundstein für weitergehende Studien auf dem Weg zu effektiven GaN-basierten Einzelphotonenquellen bei Raumtemperatur.

9 Zusammenfassung

In dieser Arbeit wurde gezeigt, wie sich durch den Einsatz von Mikroresonatoren die Licht-Materie-Wechselwirkung und damit auch das Emissionsverhalten von Quantenfilmen oder Quantenpunkten gezielt verändern lässt. Dazu wurde die Emission aus Mikrokavitäten sowohl für planare Resonatoren mit eindimensionalem optischen Einschluss wie auch für Mikrosäulenresonatoren mit dreidimensionalem optischen Einschluss untersucht. Das für die Strukturierung der planaren Kavität gewählte Verfahren des fokussierten Ionenstrahlätzens ermöglicht die Herstellung von Säulenresonatoren mit frei wählbarer Geometrie. Auf diese Weise konnten durch entsprechend gewählte Säulenquerschnitte sowohl die Polarisierung der Emission aus einzelnen Quantenpunkten kontrolliert wie auch die Kopplung der optischen Felder von zwei zirkularen Säulenresonatoren ermöglicht werden.

Die optische Charakterisierung erfolgte mittels μ -Photolumineszenzspektroskopie (μ PL), welche eine Untersuchung der Proben mit einer räumlichen Auflösung von deutlich unterhalb einem Mikrometer erlaubt. Durch eine geringfügige Veränderung des Messaufbaus wurden zudem die interne Intensitätsverteilung des optischen Feldes in den Mikrokavitäten wie auch die Dispersionsrelationen der Polaritonen und des Kavitätsphotons experimentell zugänglich. Da für zukünftige optische Bauteile eine Emission im blau-grünen Spektralbereich sowie ein Betrieb bei Raumtemperatur erstrebenswert ist, wurden die in dieser Arbeit präsentierten Untersuchungen an Mikrokavitäten auf Basis der breitlückigen Halbleiter ZnSe und GaN durchgeführt, welche für die hohe Temperaturstabilität ihrer exzitonischen Emission bekannt sind.

Zunächst wurden die optischen Eigenschaften monolithisch hergestellter oberflächenemittierender Vertikalresonatoren (VCSEL) mit drei ZnSe-Quantenfilmen als aktiver Schicht präsentiert, welche unter Raster- und Transmissionselektronenmikroskopie eine nahezu defektfreie Querschnittsfläche aufweisen. Eine optische Charakterisierung eigens prozessierter Säulenresonatoren ergab Q-Faktoren von bis zu 3450. Durch anregungsdichteabhängige PL-Messungen konnte erstmals für monolithische ZnSe-Quantenfilm VCSEL eine stimulierte Emission gezeigt werden. Zu der bei $T = 4\text{ K}$ bestimmten Laserschwelle von 5 pJ korrespondiert eine Energiedichte von 0.16 mJ/cm^2 , welche mit den von *Feltin et al.* für eine InGaN/GaN-Mikrokavität erzielten Werten von 0.2 mJ/cm^2 vergleichbar ist [268]. Zwar wurden die Messungen an den Nitrid-Proben bei Raumtemperatur durchgeführt, allerdings wurde auch eine hybride Kavität mit oberem dielektrischen Spiegel verwendet.

Aufgrund der Struktur der epitaktisch hergestellten Proben existieren Bereiche, in welchen durch Reflexionsmessungen die für den Bereich der starken Kopplung charakteristischen Reflexionsminima des unteren und oberen Polaritons nachgewiesen wurden. Für diese erstmaligen Nachweis der starken Kopplung in monolithischen ZnSe-Quantenfilm-Mikrokavitäten ließ sich aus den spektralen Positionen der Reflexionsminima eine Rabi-Aufspaltung von 19 meV ermitteln. Diese für drei Quantenfilme große Rabi-Aufspaltung, welche in guter Übereinstimmung mit Simulationen und Literaturwerten steht, zeigt die Vorteile von ZnSe-Quantenfilmen gegenüber dem GaAs-Materialsystem, in welchem lediglich eine wesentlich geringere Rabi-Aufspaltung erreicht wird. Durch Messungen im k -Raum konnte die typische

Dispersionsrelation der Polaritonen sowohl durch Reflexions- wie auch durch PL-Messungen gezeigt werden, was die starke Kopplung bestätigt. Berechnungen auf Basis eines Zwei-Oszillator-Modells konnten die Dispersionsrelationen von oberem und unterem Polariton gut reproduzieren. Eine Variation der Pulsenergie zeigte zudem an der spektralen Position des unteren Polaritons einen überlinearen Anstieg der PL-Intensität. Eine weitere Erhöhung der Anregungsleistung führte zu einem Zusammenbrechen der starken Kopplung und einem Übergang in den Bereich der schwachen Kopplung, welcher mit dem Einsetzen von photonischem Lasing an der spektralen Position des Kavitätsphotons einher ging.

Des Weiteren wurden in dieser Arbeit zwei Möglichkeiten dargestellt, mit welchen die Polarisationsentartung der Moden in Mikrokavitäten aufgehoben werden kann. Da die Emissionseffizienz eines Quantenpunktes bei Kopplung an eine Resonatormode wesentlich höher ist, wirkt sich der Polarisationszustand einer Mode direkt auf den Polarisationszustand der aus der Kavität ausgekoppelten Quantenpunktemission aus. Auf diese Weise lassen sich polarisierte Einzelphotonenquellen realisieren, welche für Anwendungen in der Quanteninformationsverarbeitung und -kryptographie eine Schlüsselrolle spielen.

Zum einen konnte in zirkularen ZnSe-basierten Mikrokavitäten eine Aufspaltung der fundamentalen Mode von bis zu 440 μeV erreicht werden, was einen Polarisationsgrad von über 82 % bedingte. Verschiedene experimentelle Hinweise deuten auf eine interne Verspannungen als mögliche Ursache für die Modenaufspaltung hin. Diese Vermutung konnte durch eine theoretische Abschätzung bekräftigt werden.

Zum anderen wurden elliptische Säulenresonatoren aus der planaren Probe prozessiert, mit welchen bei einer Elliptizität von 0.76 an Quantenfilmproben eine maximale Modenaufspaltung von 4.5 meV erreicht wurde. Diese größte für II-VI Mikrokavitäten berichtete Modenaufspaltung führte zu einem Polarisationsgrad von über 98 % an der spektralen Position der beiden orthogonal zueinander polarisierten Komponenten der fundamentalen Mode. Im Fall von Quantenpunktproben konnte erstmals für monolithische ZnSe-basierte Mikrokavitäten die spektral scharfe Emissionslinie eines einzelnen Quantenpunktes durch zwei orthogonal polarisierte Moden geschoben werden. Auf diese Weise wurde der Polarisationsgrad der Quantenpunktemission von 61 % in x-Richtung bis maximal 60 % in y-Richtung polarisiert variiert. Zusammen mit dem für eine Quantenpunktemission maximal ermittelten Polarisationsgrad von 85 % sind diese Ergebnisse ein wichtiger Schritt auf dem Weg zu einer bei Raumtemperatur betreibbaren Einzelphotonenquelle mit wählbarem Polarisationszustand.

Im siebten Kapitel wurden zwei zirkuläre Säulenresonatoren miteinander in Verbindung gebracht und dadurch deren optische Felder gekoppelt. Diese Kopplung führt zu einer spektralen Aufspaltung der von isolierten Säulenresonatoren bekannten Moden, wodurch neuartige optische Zustände entstehen. Wie durch eine Veränderung des Abstands der beiden Säulenresonatoren gezeigt wurde, hängt die Stärke der spektralen Aufspaltung bei diesen als photonische Moleküle bezeichneten Systemen entscheidend von der Kopplungsstärke zwischen den Säulenresonatoren ab.

Eine Analyse der Abstrahlcharakteristik im Fernfeld ermöglichte es, die interne Verteilung des optischen Feldes in den photonischen Molekülen räumlich abzubilden. Durch eine entsprechende Darstellung der Modencharakteristik in elliptischen Säulenresonatoren konnte für diese erstmals eine Analogie zur Feldverteilung der photonischen Moleküle hergestellt werden. Dieses Erkenntnis erlaubt eine alternative Betrachtungsweise der elliptischen Säulenresonatoren als System aus zwei gekoppelten zirkulären Säulenresonatoren. Im Unterschied zu den photonischen Molekülen ist in elliptischen Säulenresonatoren die Kopplung aufgrund des breiteren

Verbindungsstegs jedoch wesentlich stärker ausgeprägt. Sowohl für die photonischen Moleküle, wie auch für die elliptischen Säulenresonatoren konnte die experimentell bestimmte Modenverteilung durch Simulationen bestätigt werden. Dabei wurde für die photonischen Moleküle, wie erstmals auch für die elliptischen Säulenresonatoren eine Analogie der optischen Moden zur Elektronendichteverteilung eines zweiatomigen Moleküls hergestellt. Auf diese Weise lassen sich die optischen Moden durch die bekannte Elektronendichteverteilung der jeweiligen Molekülorbitale beschreiben. Da sich die optischen Moden teilweise über das gesamte photonische Molekül erstrecken, ist über eine Ankopplung an das optische Feld eine Kopplung von räumlich mehrere Mikrometer voneinander entfernten Quantenpunkten denkbar. Eine solche, im Idealfall schaltbare, Kopplung zwischen Quantenpunkten ist ein weiteres wichtiges Grundelement für die Quanteninformationsverarbeitung.

Für ein asymmetrisches photonisches Molekül mit unterschiedlichen Durchmessern der beiden zirkularen Säulenresonatoren konnte die Koexistenz von lokalisierten und delokalisierten Zuständen, wie sie für das Adressieren eines Quantenpunktes notwendig ist, erstmalig durch eine räumliche Darstellung der optischen Moden nachgewiesen werden.

Als Alternative zum II-VI-Materialsystem wurde eine GaN-basierte Mikrokavität mit einer eingebetteten aktiven Schicht aus InGaN-Quantenpunkten vorgestellt, welche sich ebenfalls für eine Emission im blau-grünen Spektralbereich eignet.

An dieser Struktur konnte unter optischer Anregung erstmals für eine monolithisch hergestellte Mikrokavität die Emission aus einzelnen InGaN-Quantenpunkten nachgewiesen werden. Ein Vergleich mit Simulationen ließ eine Abschätzung des Q-Faktors der planaren Kavität von 340 zu.

Durch die Strukturierung von Säulenresonatoren konnte ein dreidimensionaler optischer Einschluss erreicht werden, welcher sich in der Ausbildung von diskreten Moden äußerte. Für die Fundamentalmode konnte ein experimentell bestimmter Q-Faktor von 280 ermittelt werden. Sowohl die spektrale Position, deren Abhängigkeit vom Säulendurchmesser wie auch die relativen Intensitäten der verschiedenen Moden konnten durch Simulationen der Transmission von *M. Florian* bestätigt werden.

Für Quantenpunkte, welche spektral in Resonanz zu einer Kavitätsmode emittieren, konnte im Vergleich zu in Leckmoden emittierenden Quantenpunkten eine deutlich überhöhte Auskoppelleffizienz festgestellt werden. Bei optischer Anregung wurde die Emission eines einzelnen InGaN-Quantenpunktes bis zu einer Temperatur von 125 K verfolgt, was in guter Übereinstimmung mit Elektrolumineszenzmessungen steht.

Die optischen Eigenschaften der hier vorgestellten Nitrid-basierten Kavitäten sind zwar noch nicht mit den II-VI-VCSEL-Strukturen vergleichbar. Dennoch wurde mit dem erstmaligen Nachweis monolithisch eingebetteter optisch aktiver InGaN-Quantenpunkte und insbesondere der verstärkten Auskopplung der Quantenpunktemission durch eine veränderte Licht-Materie-Wechselwirkung ein wichtiger Grundstein für weitergehende Studien im Nitrid-Materialsystem gelegt.

Zusammenfassend belegen die Ergebnisse dieser Arbeit das hohe Potential von Halbleitermikrokavitäten, durch welche sich je nach Kavitätsgeometrie die optische Zustandsdichte derart verändern lässt, dass sich unterschiedlichste Effekte im Bereich der schwachen und starken Kopplung studieren und ausnutzen lassen.

Diese Arbeit hat damit einen wichtigen Beitrag zur Beantwortung der in der Einleitung aufgeworfenen Fragestellungen der Kavitäts-Elektrodynamik geliefert. Allerdings ergeben

sich aus den vorgestellten Ergebnissen auch neue Fragestellung, so wäre als nächster Schritt eine Überprüfung der Einzelphotonenemission der polarisiert emittierenden Quantenpunkte interessant. Hierzu könnte mit einem Hanbury-Brown und Twiss-Versuchsaufbau die Autokorrelation für den maximalen Polarisationsgrad der Photonen in x- und in y-Richtung bestimmt werden. Dieser erlaubt eine quantitative Aussage über das Emissionsverhalten der Quantenpunkte im Fall der polarisierten Emission.

Eine Prozessierung von photonischen Molekülen mit jeweils einem Quantenpunkt im Zentrum der beiden Säulenresonatoren ist hinsichtlich weiterer Studien zur Kopplung dieser Quantenpunkte über das optische Feld sehr interessant. Methoden zur Abstimmung der räumlichen Lage der Mikrokavität auf die Position der Quantenpunkte wurden bereits erfolgreich demonstriert [210–213], womit einer solchen Strukturierung nichts mehr im Wege steht.

Durch den Nachweis der starken Kopplung in monolithischen ZnSe-Quantenfilm-VCSELn wurde in dieser Arbeit die Grundlage für weitere Untersuchungen im Bereich der starken Kopplung und insbesondere des polaritonischen Lasings gelegt. Hierfür wäre eine Integration von ein bis zwei weiteren Quantenfilmen in eine ansonsten identische Mikrokavität sehr interessant. Da sich die Polaritonendichte mit zunehmender Anzahl an Quantenfilmen ebenfalls erhöht, sollte diese leichte Veränderung der Struktur genügen um polaritonisches Lasing zu erreichen.

Literaturverzeichnis

- [1] S. M. Bellovin. *Cryptologia* **35**, 203–222 (2011).
- [2] C. Shannon. *Bell System Technical Journal* **28**, 656–715 (1949).
- [3] G. E. Moore. *Electronics* **38**, 114–117 (1965).
- [4] F. Träger, V. S. (Eds.). *Appl. Phys. B* **84**, 1 – 369 (2006).
- [5] D. Bouwmeester, A. Ekert, A. Z. (Eds.). *The physics of quantum information: quantum cryptography, quantum teleportation, quantum computation*. Springer, Berlin (3rd ed.), 2001.
- [6] E. Knill, R. Laflamme, G. Milburn. *Nature* **409**, 46 (2001).
- [7] P. Kok, W. Munro, K. Nemoto, T. Ralph, J. Dowling, G. Milburn. *Rev. Mod. Phys.* **79**, 135 (2007).
- [8] A. Imamoglu, D. D. Awschalom, G. Burkard, D. P. DiVincenzo, D. Loss, M. Sherwin, A. Small. *Phys. Rev. Lett.* **83**, 4204 (1999).
- [9] Y. Yamamoto, R. Slusher. *Physics Today* (June 1993, pages 66 – 73).
- [10] K. J. Vahala. *Nature* **424**, 839–846 (2003).
- [11] K. Vahala (Ed.). *Optical Microcavities*. World Scientific, Singapore, 2004.
- [12] R.L. Gunshor (Ed.). *II-VI blue/green light emitters: device physics and epitaxial growth*. Semiconductors and semimetals, vol. 44, Academic Press, San Diego, 1997.
- [13] M. Klude. *ZnSe-based laser diodes with quaternary CdZnSSe quantum wells as active region: chances and limitations*. Mensch & Buch Verlag, Berlin, zugleich Dissertation, Universität Bremen, 2002.
- [14] S. Nakamura, S. Pearton, G. Fasol. *The Blue Laser Diode - The Complete Story*. 2nd ed., Springer, Berlin, 2000.
- [15] H. J. R. Dutton. International Business Machines Corporation, September 1998.
- [16] C. Weisbuch, M. Nishioka, A. Ishikawa, Y. Arakawa. *Phys. Rev. Lett.* **69**, 3314 (1992).
- [17] T. Yoshie, A. Scherer, J. Hendrickson, G. Khitrova, H. M. Gibbs, G. Rupper, C. Ell, O. B. Shchekin, D. G. Deppe. *Nature* **432**, 200–203 (2004).
- [18] L. S. Dang, D. Heger, R. André, F. Bœuf, R. Romestain. *Phys. Rev. Lett.* **81**, 3920–3923 (1998).
- [19] A. Imamoglu, R. J. Ram, S. Pau, Y. Yamamoto. *Phys. Rev. A* **53**, 4250 (1996).
- [20] A. Imamoglu, R. J. Ram. *Phys. Lett. A* **214**, 193–198 (1996).

- [21] B. Gayral, J. M. Gerard, B. Legrand, E. Costard, V. Thierry-Mieg. *Appl. Phys. Lett.* **72**, 1421–1423 (1998).
- [22] A. Daraei, D. Sanvitto, J. A. Timpson, A. M. Fox, D. M. Whittaker, M. S. Skolnick, P. S. S. Guimaraes, H. Vinck, A. Tahraoui, P. W. Fry, S. L. Liew, M. Hopkinson. *J. Appl. Phys.* **102**, 043105–6 (2007).
- [23] E. T. Allen, J. L. Crenshaw. *Z. Anorg. Chem.* **79**, 125–189 (1912).
- [24] K. Prior, C. Bradford, I. Davidson, R. Moug. *J. Cryst. Growth* **323**, 114–121 (2011).
- [25] N. Samarth, H. Luo, J. K. Furdyna, S. B. Qadri, Y. R. Lee, A. K. Ramdas, N. Otsuka. *Appl. Phys. Lett.* **54**, 2680 (1989).
- [26] L. Vegard. *Z. Phys.* **5**, 17–26 (1921).
- [27] R. Blachnik, J. Chu, R. Galazka, J. Geurts, J. Gutowski, B. Hönerlage, D. Hofmann, J. Kossut, R. Lévy, P. Michler, U. Neukirch, T. Story, D. Strauch, A. Waag. *Landolt-Börnstein*. Vol. III: Condensed matter, semiconductors, subvolume b: II-V- and I-VIII-compounds; semimagnetic compounds. Springer, Berlin, 1999.
- [28] M. Cardona. *J. Appl. Phys.* **32**, 2151 (1961).
- [29] K. Ohkawa, T. Mitsuyu, O. Yamazaki. *Appl. Phys. B* **84**, 1 – 369 (2006).
- [30] J. Gutowski, N. Presser, G. Kudlek. *Phys. Stat. Sol. (a)* **120**, 11–59 (1990).
- [31] U. Lunz, J. Kuhn, F. Goschenhofer, U. Schüssler, S. Einfeldt, C. R. Becker, G. Landwehr. *J. Appl. Phys.* **80**, 6861 (1996).
- [32] H. Okuyama, Y. Kishita, T. Miyajima, A. Ishibashi, K. Akimoto. *Appl. Phys. Lett.* **64**, 904–906 (1994).
- [33] G. A. Slack. *Phys. Rev. B* **6**, 3791–3800 (1972).
- [34] J. S. Blakemore. *J. Appl. Phys.* **53**, R123–R181 (1982).
- [35] Y. P. Varshni. *Physica* **34**, 149–154 (1967).
- [36] E. Grilli, M. Guzzi, R. Zamboni, L. Pavesi. *Phys. Rev. B* **45**, 1638 (1992).
- [37] L. Viña, S. Logothetidis, M. Cardona. *Phys. Rev. B* **30**, 1979–1991 (1984).
- [38] S. Adachi. *Properties of Group-IV, III-V and II-VI Semiconductors*. Wiley, April 2005.
- [39] J. Wu, W. Walukiewicz, K. M. Yu, J. W. Ager, S. X. Li, E. E. Haller, H. Lu, W. J. Schaff. *Solid State Commun.* **127**, 411–414 (2003).
- [40] W. Walukiewicz, J. W. Ager, K. M. Yu, Z. Liliental-Weber, J. Wu, S. X. Li, R. E. Jones, J. D. Denlinger. *J. Phys. D Appl. Phys.* **39**, R83–R99 (2006).
- [41] P. Lawaetz. *Phys. Rev. B* **5**, 4039–4045 (1972).
- [42] F. Bernardini, V. Fiorentini, D. Vanderbilt. *Phys. Rev. B* **56**, R10024 (1997).
- [43] E. Sichel, J. Pankove. *J. Phys. Chem. Solids* **38**, 330 (1977).

-
- [44] G. Slack, R. Tanzilli, R. Pohl, J. Vandersande. *J. Phys. Chem. Solids* **48**, 641 (1987).
- [45] Y. Arakawa. *Appl. Phys. Lett.* **40**, 939 (1982).
- [46] P. S. J. Zory, P. F. Liao, P. Kelley. *Quantum Well Lasers*. Academic Press Inc, June 1993.
- [47] C. F. Klingshirn. *Semiconductor Optics*. Springer Berlin Heidelberg, December 2006.
- [48] M. Sénès, K. L. Smith, T. M. Smeeton, S. E. Hooper, J. Heffernan. *Phys. Rev. B* **75**, 045314 (2007).
- [49] G. T. Einevoll. *Phys. Rev. B* **45**, 3410–3417 (1992).
- [50] U. Woggon, S. V. Gaponenko. *Phys. Stat. Sol. (b)* **189**, 285–343 (1995).
- [51] Y. Kayanuma. *Solid State Commun.* **59**, 405–408 (1986).
- [52] D. J. Norris, M. G. Bawendi. *Phys. Rev. B* **53**, 16338–16346 (1996).
- [53] J. Persson, M. Holm, C. Pryor, D. Hessman, W. Seifert, L. Samuelson, M.-E. Pistol. *Phys. Rev. B* **67**, 035320 (2003).
- [54] V. Türc, S. Rodt, O. Stier, R. Heitz, R. Engelhardt, U. W. Pohl, D. Bimberg, R. Steingrüber. *Phys. Rev. B* **61**, 9944–9947 (2000).
- [55] G. Bacher, R. Weigand, J. Seufert, N. Gippius, V. Kulakovskii, A. Forchel, K. Leonardi, D. Hommel. *Phys. Stat. Sol. (b)* **221**, 25 (2000).
- [56] T. Flissikowski, A. Hundt, M. Lowisch, M. Rabe, F. Henneberger. *Phys. Rev. Lett.* **86**, 3172 (2001).
- [57] A. Hundt, T. Flissikowski, M. Lowisch, M. Rabe, F. Henneberger. *Phys. Stat. Sol. (b)* **224**, 159–163 (2001).
- [58] K. Sebal. *Optische Verstärkung und Einzelphotonenemission in CdSe/Zn(S,Se)-Quantenpunkten*. Mensch & Buch Verlag, Berlin, zugleich Dissertation, Universität Bremen, 2003.
- [59] R. Hanbury Brown, R. Q. Twiss. *Nature* **177**, 27–29 (1956).
- [60] K. Sebal, P. Michler, T. Passow, D. Hommel, G. Bacher, A. Forchel. *Appl. Phys. Lett.* **81**, 2920 (2002).
- [61] P. Michler, A. Kiraz, C. Becher, W. V. Schoenfeld, P. M. Petroff, L. Zhang, E. Hu, A. Imamoglu. *Science* **290**, 2282–2285 (2000).
- [62] P. Michler, A. Imamoglu, M. D. Mason, P. J. Carson, G. F. Strouse, S. K. Buratto. *Nature* **406**, 968–970 (2000).
- [63] J. Claudon, J. Bleuse, N. S. Malik, M. Bazin, P. Jaffrennou, N. Gregersen, C. Sauvan, P. Lalanne, J. Gerard. *Nat. Photon.* **4**, 174–177 (2010).
- [64] H. Lohmeyer, C. Kruse, K. Sebal, J. Gutowski, D. Hommel. *Appl. Phys. Lett.* **89**, 091107–3 (2006).
- [65] A. Gust, C. Kruse, K. Sebal, H. Lohmeyer, J. Gutowski, D. Hommel. *Phys. Stat. Sol. (c)* **3**, 767–770 (2006).

- [66] A. Gust, C. Kruse, D. Hommel. *J. Cryst. Growth* **301**, 789–792 (2007).
- [67] R. Retzlaff. *Vertical-Cavity Surface-Emitting Laser Devices*. Diplomarbeit, Universität Bremen, 2010.
- [68] D. Bimberg, M. Grundmann, N. N. Ledentsov. *Quantum dot heterostructures*. John Wiley and Sons, 1999.
- [69] D. Gammon, E. S. Snow, B. V. Shanabrook, D. S. Katzer, D. Park. *Science* **273**, 87–90 (1996).
- [70] V. I. Klimov, A. A. Mikhailovsky, D. W. McBranch, C. A. Leatherdale, M. G. Bawendi. *Science* **287**, 1011–1013 (2000).
- [71] B. Ohnesorge, M. Albrecht, J. Oshinowo, A. Forchel, Y. Arakawa. *Phys. Rev. B* **54**, 11532–11538 (1996).
- [72] D. I. Babic, S. W. Corzine. *IEEE J. Quantum Electron.* **28**, 514–524 (1992).
- [73] H. Li, K. Iga (Eds.). *Vertical-Cavity Surface-Emitting Laser Devices*. Springer, 2003.
- [74] *Cavity modelling framework (CAMFR) 1.2*. Ghent University, Photonics Group, <http://camfr.sourceforge.net>, 2006.
- [75] P. Bienstmann. *Rigorous and efficient modelling of wavelength scale photonic components*. Universiteit Gent, Belgien, PhD Thesis, 2001.
- [76] H. Lohmeyer. *Optischer Einschluß, Lasing und Purcell-Effekt in Mikrosäulenkavitäten auf Basis breitlückiger Halbleiter*. Mensch & Buch Verlag, Berlin, zugleich Dissertation, Universität Bremen, 2007.
- [77] J. M. Gérard, B. Sermage, B. Gayral, B. Legrand, E. Costard, V. Thierry-Mieg. *Phys. Rev. Lett.* **81**, 1110 (1998).
- [78] J. Wiersig. *Light-Matter Interaction and Quantum Chaos in Semiconductor Nanostructures and Optical Microcavities*. Habilitationsschrift, Universität Bremen, 2007.
- [79] J. D. Jackson, K. Müller. *Klassische Elektrodynamik*. Gruyter, 3. Auflage, 2002.
- [80] T. Rivera, J.-P. Debray, J. M. Gérard, B. Legrand, L. Manin-Ferlazzo, J. L. Oudar. *Appl. Phys. Lett.* **74**, 911 (1999).
- [81] S. Rudin, T. L. Reinecke. *Phys. Rev. B* **59**, 10227–10233 (1999).
- [82] J. P. Reithmaier, G. Sek, A. Löffler, C. Hofmann, S. Kuhn, S. Reitzenstein, L. V. Keldysh, V. D. Kulakovskii, T. L. Reinecke, A. Forchel. *Nature* **432**, 197–200 (2004).
- [83] L. C. Andreani, G. Panzarini, J.-M. Gérard. *Phys. Rev. B* **60**, 13276–13279 (1999).
- [84] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu, F. Laloe. *Quantenmechanik 2: Band 2*. Gruyter, May 2008.
- [85] M. Bayer, T. L. Reinecke, F. Weidner, A. Larionov, A. McDonald, A. Forchel. *Phys. Rev. Lett.* **86**, 3168 (2001).
- [86] E. Purcell. *Phys. Rev.* **69** (1946).

-
- [87] D. Englund, D. Fattal, E. Waks, G. Solomon, B. Zhang, T. Nakaoka, Y. Arakawa, Y. Yamamoto, J. Vučković. *Phys. Rev. Lett.* **95**, 013904 (2005).
- [88] P. Michler. *Single semiconductor quantum dots*. Springer, Berlin [u.a.], 2009.
- [89] M. Grundmann. *The Physics of Semiconductors - An Introduction Including Devices and Nanophysics*. Springer, Berlin, 2006.
- [90] J. Gérard, B. Gayral. *Physica E* **9**, 131–139 (2001).
- [91] S. Bidnyk, T. J. Schmidt, Y. H. Cho, G. H. Gainer, J. J. Song, S. Keller, U. K. Mishra, S. P. DenBaars. *Appl. Phys. Lett.* **72**, 1623 (1998).
- [92] L. C. Andreani, G. Panzarini, J.-M. Gérard. *Phys. Rev. B* **60**, 13276–13279 (1999).
- [93] J. Kasprzak, M. Richard, S. Kundermann, A. Baas, P. Jeambrun, J. M. J. Keeling, F. M. Marchetti, M. H. Szymanska, R. Andre, J. L. Staehli, V. Savona, P. B. Littlewood, B. Deveaud, L. S. Dang. *Nature* **443**, 409–414 (2006).
- [94] S. Christopoulos, G. B. H. von Högersthal, A. J. D. Grundy, P. G. Lagoudakis, A. V. Kavokin, J. J. Baumberg, G. Christmann, R. Butté, E. Feltn, J.-F. Carlin, N. Grandjean. *Phys. Rev. Lett.* **98**, 126405 (2007).
- [95] N. Basov, O. Bogdankevich. *Symp. on Radiative Recombination in Semiconductors, Paris* (1964).
- [96] K. Ohkawa, T. Mitsuyu, O. Yamazaki. *Extended Abstracts 18th (1986 Intern.) Conf. on Solid State Devices and Materials. Tokyo*. 635–638 (1986).
- [97] H. Cheng, J. DePuydt, J. Potts, M. Haase. *J. Cryst. Growth* **95**, 512–516 (1989).
- [98] M. A. Haase, H. Cheng, J. M. DePuydt, J. E. Potts. *J. Appl. Phys.* **67**, 448–452 (1990).
- [99] K. Akimoto, T. Miyajima, Y. kri. *Jap. J. Appl. Phys.* **28**, L531–L534 (1989).
- [100] R. M. Park, M. B. Troffer, C. M. Rouleau, J. M. DePuydt, M. A. Haase. *Appl. Phys. Lett.* **57**, 2127–2129 (1990).
- [101] M. A. Haase, J. Qiu, J. M. DePuydt, H. Cheng. *Appl. Phys. Lett.* **59**, 1272–1274 (1991).
- [102] *U.S. Patent #3,982,207, issued September 21, 1976, Inventors R. Dingle and C. H. Henry, "Quantum Effects in Heterostructure Lasers", filed March 7, 1975, .*
- [103] R. D. Dupuis, P. D. Dapkus, J. Nick Holonyak, E. A. Rezek, R. Chin. *Appl. Phys. Lett.* **32**, 295–297 (1978).
- [104] R. Chin, J. N. Holonyak, B. A. Vojak, K. Hess, R. D. Dupuis, P. D. Dapkus. *Appl. Phys. Lett.* **36**, 19–21 (1980).
- [105] A. Gust, C. Kruse, M. Klude, E. Roventa, R. Kröger, K. Sebald, H. Lohmeyer, B. Brendemühl, J. Gutowski, D. Hommel. *Phys. Stat. Sol. (c)* **2**, 1098–1105 (2005).
- [106] E. Moreau, I. Robert, J. Gerard, I. Abram, L. Manin, V. Thierry-Mieg. *Appl. Phys. Lett.* **79**, 2865–2867 (2001).

- [107] Z. Yuan, B. E. Kardynal, R. M. Stevenson, A. J. Shields, C. J. Lobo, K. Cooper, N. S. Beattie, D. A. Ritchie, M. Pepper. *Science* **295**, 102–105 (2002).
- [108] R. Arians, T. Kümmell, G. Bacher, A. Gust, C. Kruse, D. Hommel. *Appl. Phys. Lett.* **90**, 101114 (2007).
- [109] O. Fedorych, C. Kruse, A. Ruban, D. Hommel, G. Bacher, T. Kümmell. *Appl. Phys. Lett.* **100**, 061114 (2012).
- [110] P. Kelkar, V. Kozlov, H. Jeon, A. V. Nurmikko, C.-C. Chu, D. C. Grillo, J. Han, C. G. Hua, R. L. Gunshor. *Phys. Rev. B* **52**, R5491–R5494 (1995).
- [111] M. R. Lorenz, B. B. Binkowski. *J. Electrochem. Soc.* **109**, 24–26 (1962).
- [112] S. Nakamura, T. Mukai, M. Senoh. *Appl. Phys. Lett.* **64**, 1687 (1994).
- [113] S. Nakamura, M. Senoh, S.-i. Nagahama, N. Iwasa, T. Yamada, T. Matsushita, H. Kiyoku, Y. Sugimoto. *Jap. J. Appl. Phys.* **35**, L74–L76 (1996).
- [114] H. Sakaki, Y. Arakawa, M. Nishioka, J. Yoshino, H. Okamoto, N. Miura. *Appl. Phys. Lett.* **46**, 83–85 (1985).
- [115] M. Asada, Y. Miyamoto, Y. Suematsu. *IEEE J. Quantum Electron.* **22**, 1915–1921 (1986).
- [116] L. Goldstein, F. Glas, J. Y. Marzin, M. N. Charasse, G. L. Roux. *Appl. Phys. Lett.* **47**, 1099–1101 (1985).
- [117] N. Kirstaedter, N. Ledentsov, M. Grundmann, D. Bimberg, V. Ustinov, S. Ruvimov, M. Maximov, P. Kop'ev, Z. Alferov, U. Richter, P. Werner, U. Gosele, J. Heydenreich. *Electron. Lett.* **30**, 1416–1417 (1994).
- [118] D. L. Huffaker, G. Park, Z. Zou, O. B. Shchekin, D. G. Deppe. *Appl. Phys. Lett.* **73**, 2564–2566 (1998).
- [119] G. Liu, A. Stintz, H. Li, K. Malloy, L. Lester. *Electron. Lett.* **35**, 1163–1165 (1999).
- [120] Firmenhomepage Fujitsu:
<http://www.fujitsu.com/global/news/pr/archives/month/2004/20040910-01.html>. *University of Tokyo Develop World's First 10Gbps Quantum Dot Laser Featuring Breakthrough Temperature-Independent Output*, (10 September 2004).
- [121] D. Bimberg, U. W. Pohl. *Mater. Today* **14**, 388–397 (2011).
- [122] J. P. Reithmaier, A. Somers, W. Kaiser, S. Deubert, F. Gerschütz, A. Forchel, O. Parillaud, M. Krakowski, R. Alizon, D. Hadass, A. Bilenca, H. Dery, V. Mikhelashvili, G. Eisenstein, M. Gioannini, I. Montrosset, T. W. Berg, M. van der Poel, J. Mørk, B. Tromborg. *Phys. Stat. Sol. (b)* **243**, 3981–3987 (2006).
- [123] N. Gisin, G. Ribordy, W. Tittel, H. Zbinden. *Rev. Mod. Phys.* **74**, 145 (2002).
- [124] E. Knill, R. Laflamme, G. J. Milburn. *Nature* **409**, 46–52 (2001).
- [125] D. Leonard, M. Krishnamurthy, C. M. Reaves, S. P. Denbaars, P. M. Petroff. *Appl. Phys. Lett.* **63**, 3203–3205 (1993).

-
- [126] J. M. Moison, F. Houzay, F. Barthe, L. Leprince, E. André, O. Vatel. *Appl. Phys. Lett.* **64**, 196–198 (1994).
- [127] Q. Xie, A. Madhukar, P. Chen, N. P. Kobayashi. *Phys. Rev. Lett.* **75**, 2542–2545 (1995).
- [128] G. S. Solomon, J. A. Trezza, A. F. Marshall, J. S. Harris, Jr. *Phys. Rev. Lett.* **76**, 952–955 (1996).
- [129] S. H. Xin, P. D. Wang, A. Yin, C. Kim, M. Dobrowolska, J. L. Merz, J. K. Furdyna. *Appl. Phys. Lett.* **69**, 3884–3886 (1996).
- [130] K. Leonardi, H. Heinke, K. Ohkawa, D. Hommel, H. Selke, F. Gindele, U. Woggon. *Appl. Phys. Lett.* **71**, 1510 (1997).
- [131] F. Flack, N. Samarth, V. Nikitin, P. A. Crowell, J. Shi, J. Levy, D. D. Awschalom. *Phys. Rev. B* **54**, R17312–R17315 (1996).
- [132] H.-C. Ko, D.-C. Park, Y. Kawakami, S. Fujita, S. Fujita. *Appl. Phys. Lett.* **70**, 3278–3280 (1997).
- [133] M. Strassburg, V. Kutzer, U. W. Pohl, A. Hoffmann, I. Broser, N. N. Ledentsov, D. Bimberg, A. Rosenauer, U. Fischer, D. Gerthsen, I. L. Krestnikov, M. V. Maximov, P. S. Kop'ev, Z. Alferov. *Appl. Phys. Lett.* **72**, 942–944 (1998).
- [134] T. Passow, K. Leonardi, H. Heinke, D. Hommel, D. Litvinov, A. Rosenauer, D. Gerthsen, J. Seufert, G. Bacher, A. Forchel. *J. Appl. Phys.* **92**, 6546–6552 (2002).
- [135] I. N. Stranski, L. Krastanow. *Monatshefte für Chemie / Chemical Monthly* **71**, 351–364 (1937).
- [136] D. J. Eaglesham, M. Cerullo. *Phys. Rev. Lett.* **64**, 1943–1946 (1990).
- [137] S. Guha, A. Madhukar, K. C. Rajkumar. *Appl. Phys. Lett.* **57**, 2110–2112 (1990).
- [138] Y. Horikoshi, M. Kawashima, H. Yamaguchi. *Jap. J. Appl. Phys.* **25**, L868–L870 (1986).
- [139] T. Yamaguchi, K. Sebald, H. Lohmeyer, S. Gangopadhyay, J. Falta, J. Gutowski, S. Figge, D. Hommel. *Phys. Stat. Sol. (c)* **3**, 3955–3958 (2006).
- [140] S. Figge, C. Tessarek, T. Aschenbrenner, D. Hommel. *Phys. Stat. Sol. (b)* **248**, 1765–1776 (2011).
- [141] A. Zrenner, L. V. Butov, M. Hagn, G. Abstreiter, G. Böhm, G. Weimann. *Phys. Rev. Lett.* **72**, 3382–3385 (1994).
- [142] T. Kümmell, R. Weigand, G. Bacher, A. Forchel, K. Leonardi, D. Hommel, H. Selke. *Appl. Phys. Lett.* **73**, 3105–3107 (1998).
- [143] O. Moriwaki, T. Someya, K. Tachibana, S. Ishida, Y. Arakawa. *Appl. Phys. Lett.* **76**, 2361–2363 (2000).
- [144] P. Michler. *Nonclassical Light from Single Semiconductor Quantum Dots*. In *Single Quantum Dots*, P. Michler (Ed.), S. 315, Springer, Berlin, Berlin, 2003.

- [145] G. Bacher. *Optical Spectroscopy on Epitaxially Grown II-VI Single Quantum Dots*. In *Single Quantum Dots*, P. Michler (Ed.), S. 147, Springer, Berlin, Berlin, 2003.
- [146] L. Besombes, K. Kheng, L. Marsal, H. Mariette. *Phys. Rev. B* **63**, 155307 (2001).
- [147] M. Bayer, A. Forchel. *Phys. Rev. B* **65**, 041308 (2002).
- [148] K. Sebald, H. Lohmeyer, J. Gutowski, T. Yamaguchi, D. Hommel. *Phys. Stat. Sol. (b)* **243**, 1661–1664 (2006).
- [149] S. Kako, C. Santori, K. Hoshino, S. Gotzinger, Y. Yamamoto, Y. Arakawa. *Nat. Mater.* **5**, 887–892 (2006).
- [150] V. D. Kulakovskii, G. Bacher, R. Weigand, T. Kümmell, A. Forchel, E. Borovitskaya, K. Leonardi, D. Hommel. *Phys. Rev. Lett.* **82**, 1780 (1999).
- [151] G. Bacher, R. Weigand, J. Seufert, V. D. Kulakovskii, N. A. Gippius, A. Forchel, K. Leonardi, D. Hommel. *Phys. Rev. Lett.* **83**, 4417–4420 (1999).
- [152] S. Rodt, A. Schliwa, R. Heitz, V. Türc, O. Stier, R. Sellin, M. Strassburg, U. Pohl, D. Bimberg. *Phys. Stat. Sol. (b)* **234**, 354–367 (2002).
- [153] V. Türc, S. Rodt, R. Heitz, O. Stier, M. Strassburg, U. Pohl, D. Bimberg. *Phys. Stat. Sol. (b)* **224**, 217–221 (2001).
- [154] M. Rambach, J. Seufert, M. Obert, G. Bacher, A. Forchel, K. Leonardi, T. Passow, D. Hommel. *Phys. Stat. Sol. (b)* **229**, 503–507 (2002).
- [155] L. Marsal, L. Besombes, F. Tinjod, K. Kheng, A. Wasiela, B. Gilles, J.-L. Rouvière, H. Mariette. *J. Appl. Phys.* **91**, 4936–4943 (2002).
- [156] D. Gammon, E. S. Snow, B. V. Shanabrook, D. S. Katzer, D. Park. *Phys. Rev. Lett.* **76**, 3005 (1996).
- [157] M. Klude, T. Passow, R. Kroger, D. Hommel. *Electron. Lett.* **37**, 1119–1120 (2001).
- [158] K. Sebald, P. Michler, J. Gutowski, R. Kröger, T. Passow, M. Klude, D. Hommel. *Phys. Stat. Sol. (a)* **190**, 593–597 (2002).
- [159] Q. Wang, T. Wang, J. Bai, A. G. Cullis, P. J. Parbrook, F. Ranalli. *J. Appl. Phys.* **103**, 123522 (2008).
- [160] S. Nakamura, M. Senoh, S. ichi Nagahama, N. Iwasa, T. Yamada, T. Matsushita, H. Kiyoku, Y. Sugimoto. *Jap. J. Appl. Phys.* **35**, L74–L76 (1996).
- [161] S. Chichibu, T. Azuhata, T. Sota, S. Nakamura. *Appl. Phys. Lett.* **69**, 4188–4190 (1996).
- [162] J. Kalden, K. Sebald, J. Gutowski, C. Tessarek, T. Aschenbrenner, S. Figge, D. Hommel. *Phys. Stat. Sol. (c)* **6**, S590–S593 (2009).
- [163] P. A. Hiskett, D. Rosenberg, C. G. Peterson, R. J. Hughes, S. Nam, A. E. Lita, A. J. Miller, J. E. Nordholt. *New J. Phys.* **8**, 193 (2006).
- [164] W. Pressemitteilung. *World Premiere: Bank Transfer via Quantum Cryptography Based on Entangled Photons*, (21. April 2004).

-
- [165] R. Arians, A. Gust, T. Kümmell, C. Kruse, S. Zaitsev, G. Bacher, D. Hommel. *Appl. Phys. Lett.* **93**, 173506 (2008).
- [166] A. Gust, C. Kruse, K. Otte, J. Kalden, T. Meeser, K. Sebald, J. Gutowski, D. Hommel. *Nanotechnology* **20**, 015401 (2009).
- [167] A. F. Jarjour, R. A. Taylor, R. A. Oliver, M. J. Kappers, C. J. Humphreys, A. Tahraoui. *Appl. Phys. Lett.* **93**, 233103–3 (2008).
- [168] B. E. Kardynal, Z. L. Yuan, A. J. Shields. *Nat. Photon.* **2**, 425–428 (2008).
- [169] M. Assmann, F. Veit, M. Bayer, M. van der Poel, J. M. Hvam. *Science* **325**, 297–300 (2009).
- [170] K. Iga, F. Koyama, S. Kinoshita. *IEEE J. Quantum Electron.* **24**, 1845–1855 (1988).
- [171] H. Soda, K. ichi Iga, C. Kitahara, Y. Suematsu. *Jap. J. Appl. Phys.* **18**, 2329–2330 (1979).
- [172] F. Koyama, S. Kinoshita, K. Iga. *Appl. Phys. Lett.* **55**, 221–222 (1989).
- [173] J.-F. Carlin, C. Zellweger, J. Dorsaz, S. Nicolay, G. Christmann, E. Feltin, R. Butté, N. Grandjean. *Phys. Stat. Sol. (b)* **242**, 2326 (2005).
- [174] R. Stanley, R. Houdré, U. Oesterle, M. Gailhanou, M. Ilegems. *Appl. Phys. Lett.* **65**, 1883 (1994).
- [175] S. Reitzenstein, C. Hofmann, A. Gorbunov, M. Strauss, S. H. Kwon, C. Schneider, A. Löffler, S. Hofling, M. Kamp, A. Forchel. *Appl. Phys. Lett.* **90**, 251109–3 (2007).
- [176] D. Huffaker, D. Deppe, K. Kumar, T. Rogers. *Appl. Phys. Lett.* **65**, 97 (1994).
- [177] N. Nakayama, S. Itoh, T. Ohata, K. Nakano, H. Okuyama, M. Ozawa, A. Ishibashi, M. Ikeda, Y. Mori. *Electron. Lett.* **29**, 1488–1489 (1993).
- [178] P. Uusimaa, K. Rakennus, A. Salokatve, M. Pessa, T. Aherne, J. P. Doran, J. O’Gorman, J. Hegarty. *Appl. Phys. Lett.* **67**, 2197 (1995).
- [179] C. Kruse. *Grüne oberflächenemittierende Halbleiterlaser (VCSEL) auf Basis von II-VI-Verbindungen*. Dissertation, Universität Bremen, 2004.
- [180] N. Teraguchi, H. Mouri, Y. Tomomura, A. Suzuki, H. Taniguchi, J. Rorison, G. Duggan. *Appl. Phys. Lett.* **67**, 2945–2947 (1995).
- [181] T. Tawara, H. Yoshida, T. Yogo, S. Tanaka, I. Suemune. *J. Cryst. Growth* **221**, 699–703 (2000).
- [182] C. Kruse, G. Alexe, M. Klude, H. Heinke, D. Hommel. *Phys. Stat. Sol. (b)* **229**, 111–115 (2002).
- [183] C. Kruse, S. Ulrich, G. Alexe, E. Roventa, R. Kröger, B. Brendemühl, P. Michler, J. Gutowski, D. Hommel. *Phys. Stat. Sol. (b)* **241**, 731 (2004).
- [184] H. Lohmeyer, K. Sebald, C. Kruse, R. Kroger, J. Gutowski, D. Hommel, J. Wiersig, N. Baer, F. Jahnke. *Appl. Phys. Lett.* **88**, 051101–3 (2006).
- [185] K. Sebald, C. Kruse, J. Wiersig. *Phys. Stat. Sol. (b)* **246**, 255–271 (2009).

- [186] M. A. Khan, J. Kuznia, J. V. Hove, D. Olson. *Appl. Phys. Lett.* **59**, 1449 (1991).
- [187] J. Redwing, D. Loeber, N. Anderson, M. Tischler, J. Flynn. *Appl. Phys. Lett.* **69**, 1 (1996).
- [188] T. Someya, R. Werner, A. Forchel, M. Catalano, R. Cingolani, Y. Arakawa. *Science* **285**, 1905 (1999).
- [189] A. Nurmikko, J. Han. *Progress in Blue and Near-Ultraviolet Vertical-Cavity Emitters: A Status Report*. In *Vertical-Cavity Surface-Emitting Laser Devices*, H. Li, K. I. (Eds.), S. 343, Springer, Berlin, 2002.
- [190] C. Kruse, S. Figge, H. Dartsch, C. Tessarek, D. Hommel, H. Lohmeyer, J. Kalden, K. Sebal, J. Gutowski. *Phys. Stat. Sol. (c)* **5**, 2320–2322 (2008).
- [191] H. Lohmeyer, K. Sebal, J. Gutowski, R. Kröger, C. Kruse, D. Hommel, J. Wiersig, F. Jahnke. *Eur. Phys. J. B* **48**, 291–294 (2005).
- [192] K. Sebal, H. Lohmeyer, J. Gutowski, T. Yamaguchi, C. Kruse, D. Hommel, J. Wiersig, F. Jahnke. *Phys. Stat. Sol. (b)* **244**, 1806–1809 (2007).
- [193] H. Lohmeyer, K. Sebal, C. Kruse, R. Kröger, J. Gutowski, D. Hommel, J. Wiersig, F. Jahnke. *Phys. Stat. Sol. (a)* **203**, 1749–1753 (2006).
- [194] E. Felin, R. Butté, J.-F. Carlin, J. Dorsaz, N. Grandjean, M. Ilegems. *Electron. Lett.* **41**, 94 (2005).
- [195] G. Christmann, D. Simeonov, R. Butté, E. Felin, J. Carlin, N. Grandjean. *Appl. Phys. Lett.* **89**, 261101 (2006).
- [196] R. Butté, J.-F. Carlin, E. Felin, M. Gonschorek, S. Nicolay, G. Christmann, D. Simeonov, A. Castiglia, J. Dorsaz, H. J. Buehlmann, S. Christopoulos, G. B. H. von Högersthal, A. J. D. Grundy, M. Mosca, C. Pinquier, M. A. Py, F. Demangeot, J. Frandon, P. G. Lagoudakis, J. J. Baumberg, N. Grandjean. *J. Phys. D: Appl. Phys.* **40**, 6328 (2007).
- [197] C. Kruse, H. Dartsch, T. Aschenbrenner, S. Figge, D. Hommel. *Phys. Stat. Sol. (b)* **248**, 1748–1755 (2011).
- [198] J. L. Jewell, A. Scherer, S. L. McCall, A. C. Gossard, J. H. English. *Appl. Phys. Lett.* **51**, 94–96 (1987).
- [199] J. L. Jewell, S. L. McCall, A. Scherer, H. H. Houh, N. A. Whitaker, A. C. Gossard, J. H. English. *Appl. Phys. Lett.* **55**, 22 (1989).
- [200] K. Iga, S. Kinoshita, F. Koyama. *Electron. Lett.* **23**, 134–136 (1987).
- [201] T. Tezuka, S. Nunoue. *J. Appl. Phys.* **79**, 2875 (1996).
- [202] J. M. Gérard, D. Barrier, J. Y. Marzin, R. Kuszelewicz, L. Manin, E. Costard, V. Thierry-Mieg, T. Rivera. *Appl. Phys. Lett.* **69**, 449 (1996).
- [203] A. Löffler, J. P. Reithmaier, G. Sek, C. Hofmann, S. Reitzenstein, M. Kamp, A. Forchel. *Appl. Phys. Lett.* **86**, 111105–3 (2005).
- [204] D. Sanvitto, A. Daraei, A. Tahraoui, M. Hopkinson, P. W. Fry, D. M. Whittaker, M. S. Skolnick. *Appl. Phys. Lett.* **86**, 191109 (2005).

-
- [205] T. Meeser. *Optische Eigenschaften von CdSe-Quantenpunkten unter optischer und elektrischer Anregung*. Diplomarbeit, Universität Bremen, 2008.
- [206] C. Böckler, S. Reitzenstein, C. Kistner, R. Debusmann, A. Löffler, T. Kida, S. Höfling, A. Forchel, L. Grenouillet, J. Claudon, J. M. Gérard. *Appl. Phys. Lett.* **92**, 091107 (2008).
- [207] J. Kalden. *Optische und optoelektronische Eigenschaften von Nanostrukturen auf Basis breitlückiger Halbleiter*. Mensch & Buch Verlag, Berlin, zugleich Dissertation, Universität Bremen, 2010.
- [208] C. Schneider, A. Huggenberger, T. Sunner, T. Heindel, M. Strauss, S. Gopfert, P. Weinmann, S. Reitzenstein, L. Worschech, M. Kamp, S. Höfling, A. Forchel. *Nanotechnology* **20**, 434012 (2009).
- [209] S. Kiravittaya, M. Benyoucef, R. Zapf-Gottwick, A. Rastelli, O. G. Schmidt. *Appl. Phys. Lett.* **89**, 233102 (2006).
- [210] K. H. Lee, A. M. Green, R. A. Taylor, D. N. Sharp, J. Scrimgeour, O. M. Roche, J. H. Na, A. F. Jarjour, A. J. Turberfield, F. S. F. Brossard, D. A. Williams, G. A. D. Briggs. *Appl. Phys. Lett.* **88**, 193106 (2006).
- [211] A. Dousse, L. Lanco, J. Suffczynski, E. Semenova, A. Miard, A. Lemaître, I. Sagnes, C. Roblin, J. Bloch, P. Senellart. *Phys. Rev. Lett.* **101**, 267404–4 (2008).
- [212] A. Dousse, J. Suffczynski, A. Beveratos, O. Krebs, A. Lemaître, I. Sagnes, J. Bloch, P. Voisin, P. Senellart. *Nature* **466**, 217–220 (2010).
- [213] A. Badolato, K. Hennessy, M. Atature, J. Dreiser, E. Hu, P. M. Petroff, A. Imamoglu. *Science* **308**, 1158–1161 (2005).
- [214] V. Ramaswamy, W. G. French, R. D. Standley. *Appl. Opt.* **17**, 3014–3017 (1978).
- [215] K. D. Choquette, R. E. Leibenguth. *IEEE Photonics Technol. Lett.* **6**, 40–42 (1994).
- [216] D. M. Whittaker, P. S. S. Guimaraes, D. Sanvitto, H. Vinck, S. Lam, A. Daraei, J. A. Timpson, A. M. Fox, M. S. Skolnick, Y. D. Ho, J. G. Rarity, M. Hopkinson, A. Tahraoui. *Appl. Phys. Lett.* **90**, 161105–3 (2007).
- [217] A. Daraei, A. Tahraoui, D. Sanvitto, J. A. Timpson, P. W. Fry, M. Hopkinson, P. S. S. Guimaraes, H. Vinck, D. M. Whittaker, M. S. Skolnick, A. M. Fox. *Appl. Phys. Lett.* **88**, 051113–3 (2006).
- [218] D. C. Unitt, A. J. Bennett, P. Atkinson, D. A. Ritchie, A. J. Shields. *Phys. Rev. B* **72**, 033318 (2005).
- [219] J. A. Timpson, D. Sanvitto, A. Daraei, P. S. S. Guimaraes, H. Vinck, S. Lam, D. M. Whittaker, M. S. Skolnick, A. M. Fox, C. Y. Hu, Y. D. Ho, R. Gibson, J. G. Rarity, S. Pellegrini, K. J. Gordon, R. E. Warburton, A. Tahraoui, G. S. Buller, P. W. Fry, M. Hopkinson. *J. Mod. Opt.* **54**, 453–465 (2007).
- [220] M. Bayer, T. Gutbrod, J. P. Reithmaier, A. Forchel, T. L. Reinecke, P. A. Knipp, A. A. Dremin, V. D. Kulakovskii. *Phys. Rev. Lett.* **81**, 2582 (1998).
- [221] M. Bayer, T. Gutbrod, A. Forchel, T. L. Reinecke, P. A. Knipp, R. Werner, J. P. Reithmaier. *Phys. Rev. Lett.* **83**, 5374–5377 (1999).

- [222] V. Zhuk, D. Regelman, D. Gershoni, M. Bayer, J. Reithmaier, A. Forchel, P. Knipp, T. Reinecke. *Phys. Rev. B* **66**, 115302 (2002).
- [223] G. Guttroff, M. Bayer, A. Forchel, P. A. Knipp, T. L. Reinecke. *Phys. Rev. E* **63**, 036611 (2001).
- [224] M. Bayer, A. Forchel, T. Reinecke, P. Knipp, S. Rudin. *Phys. Stat. Sol. (a)* **191**, 3–32 (2002).
- [225] M. Karl, S. Li, T. Passow, W. Löffler, H. Kalt, M. Hetterich. *Opt. Express* **15**, 8191–8196 (2007).
- [226] M. Karl. *Lichteinschluss in pyramidalen und säulenförmigen Mikroresonatoren*. Dissertation, Universität Karlsruhe, 2009.
- [227] F. M. Weber, M. Karl, J. Lupaca-Schomber, W. Löffler, S. Li, T. Passow, J. Hawecker, D. Gerthsen, H. Kalt, M. Hetterich. *Appl. Phys. Lett.* **90**, 161104 (2007).
- [228] A. Nakagawa, S. Ishii, T. Baba. *Appl. Phys. Lett.* **86**, 041112 (2005).
- [229] M. Benyoucef, S. Kiravittaya, Y. F. Mei, A. Rastelli, O. G. Schmidt. *Phys. Rev. B* **77**, 035108 (2008).
- [230] K. A. Atlasov, K. F. Karlsson, A. Rudra, B. Dwir, E. Kapon. *Opt. Express* **16**, 16255–16264 (2008).
- [231] C.-S. Kee, H. Lim, J. Lee. *Phys. Rev. B* **67**, 073103 (2003).
- [232] R. Houdré, R. P. Stanley, U. Oesterle, M. Ilegems, C. Weisbuch. *Phys. Rev. B* **49**, 16761–16764 (1994).
- [233] R. Houdré, C. Weisbuch, R. P. Stanley, U. Oesterle, P. Pellandini, M. Ilegems. *Phys. Rev. Lett.* **73**, 2043–2046 (1994).
- [234] G. Malpuech, A. D. Carlo, A. Kavokin, J. J. Baumberg, M. Zamfirescu, P. Lugli. *Appl. Phys. Lett.* **81**, 412–414 (2002).
- [235] Y.-K. Song, H. Zhou, M. Diagne, A. V. Nurmikko, J. R. P. Schneider, C. P. Kuo, M. R. Krames, R. S. Kern, C. Carter-Coman, F. A. Kish. *Appl. Phys. Lett.* **76**, 1662–1664 (2000).
- [236] Y. Akahane, T. Asano, B. Song, S. Noda. *Nature* **425**, 944–947 (2003).
- [237] E. Peter, P. Senellart, D. Martrou, A. Lemaître, J. Hours, J. M. Gérard, J. Bloch. *Phys. Rev. Lett.* **95**, 067401 (2005).
- [238] T. Tawara, H. Yoshida, T. Yogo, S. Tanaka, I. Suemune. *J. Cryst. Growth* **221**, 699–703 (2000).
- [239] C. Kruse, S. Ulrich, G. Alexe, E. Roventa, R. Kroger, B. Brendemühl, P. Michler, J. Gutowski, D. Hommel. *Phys. Stat. Sol. (b)* **241**, 731–738 (2004).
- [240] C. Kruse, H. Lohmeyer, K. Sebald, J. Gutowski, D. Hommel, J. Wiersig, F. Jahnke. *Appl. Phys. Lett.* **92**, 031101 (2008).
- [241] S. Klembt, H. Dartsch, M. Anastasescu, M. Gartner, C. Kruse. *App. Phys. Lett.* **99**, 151101 (2011).

-
- [242] M. Klude, G. Alexe, C. Kruse, T. Passow, H. Heinke, D. Hommel. *Phys. Stat. Sol. (b)* **229**, 935–942 (2002).
- [243] S. Klemmt, C. Kruse, Universität Bremen. *Private Mitteilungen*. 2011.
- [244] K. Leonardi, D. Hommel, C. Meyne, J.-T. Zettler, W. Richter. *J. Cryst. Growth* **201–202**, 1222–1225 (1999).
- [245] T. Passow, H. Heinke, T. Schmidt, J. Falta, A. Stockmann, H. Selke, P. L. Ryder, K. Leonardi, D. Hommel. *Phys. Rev. B* **64**, 193311 (2001).
- [246] R. Kröger, C. Kruse, C. Roder, D. Hommel, A. Rosenauer. *Phys. Stat. Sol. (b)* **243**, 1533–1536 (2006).
- [247] H. Dartsch, C. Tessarek, T. Aschenbrenner, S. Figge, C. Kruse, M. Schowalter, A. Rosenauer, D. Hommel. *J. Cryst. Growth* **320**, 28–31 (2011).
- [248] I. H. Ho, G. B. Stringfellow. *Appl. Phys. Lett.* **69**, 2701 (1996).
- [249] C. Tessarek, T. Yamaguchi, S. Figge, D. Hommel. *Phys. Stat. Sol. (c)* **6**, S561–S564 (2009).
- [250] T. Mehrrens. *Bestimmung von Segregationsprofilen in $\text{In}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ -Quantentrögen mittels konventioneller und Rastertransmissionselektronenmikroskopie*. Diplomarbeit, Universität Bremen, 2009.
- [251] A. Scherer, J. L. Jewell, Y. H. Lee, J. P. Harbison, L. T. Florez. *Appl. Phys. Lett.* **55**, 2724 (1989).
- [252] S. Varoutsis, S. Laurent, I. Sagnes, A. Lemaître, L. Ferlazzo, C. Mériadec, G. Patriarche, I. Robert-Philip, I. Abram. *J. Vac. Sci. Technol. B* **23(6)**, 2499 (2005).
- [253] S. Reyntjens, R. Puers. *J. Micromech. Microeng.* **11**, 287–300 (2001).
- [254] M. Hayles, M. Dufek. *xT Nova NanoLab User's Manual*. FEI Company, 5th Edition, 2006.
- [255] J.-P. Richters. *Optische Eigenschaften von ZnO-Nanodrähten: Einfluss von Oberflächenbehandlungen und hohen Anregungsdichten*. Mensch & Buch Verlag, Berlin, zugleich Dissertation, Universität Bremen, 2010.
- [256] M. Richard, J. Kasprzak, R. Romestain, R. André, L. S. Dang. *Phys. Rev. Lett.* **94**, 187401 (2005).
- [257] M. Richard, J. Kasprzak, R. André, R. Romestain, L. S. Dang, G. Malpuech, A. Kavokin. *Phys. Rev. B* **72**, 201301 (2005).
- [258] E. Hecht. *Optics*. Addison Wesley, Reading, Mass., 2nd ed., 1974.
- [259] S. Johnson, J. Joannopoulos. *Opt. Express* **8**, 173–190 (2001).
- [260] R. Brendemühl. *Optische Verstärkung und Lasing in breitlückigen Halbleitern*. Diplomarbeit, Universität Bremen, 2003.
- [261] M. Behringer. *Molekular-Strahl-Epitaxie von Laserdioden auf der Basis von ZnSe und deren optische und elektrische Charakterisierung*. Shaker Verlag, Aachen, zugleich Dissertation, Universität Bremen, 1998.

- [262] J. Tanimura, O. Wada, T. Ogama, Y. Endoh, M. Imaizumi. *J. Appl. Phys.* **77**, 6223–6227 (1995).
- [263] C.-Y. Yeh, Z. W. Lu, S. Froyen, A. Zunger. *Phys. Rev. B* **46**, 10086–10097 (1992).
- [264] H. Okuyama, Y. Kishita, A. Ishibashi. *Phys. Rev. B* **57**, 2257–2263 (1998).
- [265] H. J. Chen, D. Y. Lin, Y. S. Huang, R. C. Tu, Y. K. Su, K. K. Tiong. *Semicond. Sci. Technol.* **14**, 85 (1999).
- [266] K. Y. Kim. *Recent Optical and Photonic Technologies*. InTech, 2010.
- [267] L. Malikova, W. Krystek, F. H. Pollak, N. Dai, A. Cavus, M. C. Tamargo. *Phys. Rev. B* **54**, 1819–1824 (1996).
- [268] E. Feltin, G. Christmann, J. Dorsaz, A. Castiglia, J.-F. Carlin, R. Butté, N. Grandjean, S. Christopoulos, G. B. H. von Högersthal, A. J. D. Grundy, P. G. Lagoudakis, J. J. Baumberg. *Electron. Lett.* **43**, 924 – 926 (2007).
- [269] A. Curran, J. K. Morrod, K. A. Prior, A. K. Kar, R. J. Warburton. *Semicond. Sci. Technol.* **22**, 1189 (2007).
- [270] M. Richard, Institut Néel-CNRS. *Private Mitteilungen*. 2011.
- [271] T. Miyajima, F. P. Logue, J. F. Donegan, J. Hegarty, H. Okuyama, A. Ishibashi, Y. Mori. *Appl. Phys. Lett.* **66**, 180–182 (1995).
- [272] A. G. Silva, C. A. Parra-Murillo, P. T. Valentim, J. S. Morais, F. Plentz, P. S. Guimaraes, H. Vinck-Posada, B. A. Rodriguez, M. S. Skolnick, A. Tahraoui, M. Hopkinson. *Opt. Express* **16**, 19201–19207 (2008).
- [273] D. C. Unitt, A. J. Bennett, P. Atkinson, D. A. Ritchie, A. J. Shields. *Phys. Rev. B* **72**, 033318–4 (2005).
- [274] J. Timpson, D. Sanvitto, A. Daraei, P. Guimaraes, A. Tahraoui, P. Fry, M. Hopkinson, D. Whittaker, A. Fox, M. Skolnick. *Physica E* **32**, 500–503 (2006).
- [275] R. Khenata, A. Bouhemadou, M. Sahnoun, A. H. Reshak, H. Baltache, M. Rabah. *Comp. Mater. Sci.* **38**, 29–38 (2006).
- [276] J. Timpson, D. Sanvitto, A. Daraei, P. Guimaraes, A. Tahraoui, P. Fry, M. Hopkinson, D. Whittaker, A. Fox, M. Skolnick. *Physica E* **32**, 500–503 (2006).
- [277] D. Manthey. *Orbital viewer 1.04*. <http://www.orbitals.com/orb/ov.htm>, 2004.
- [278] S. Vignolini, F. Intonti, M. Zani, F. Riboli, D. S. Wiersma, L. H. Li, L. Balet, M. Francardi, A. Gerardino, A. Fiore, M. Gurioli. *Appl. Phys. Lett.* **94**, 151103–3 (2009).
- [279] *LayTec AnalysR Database*. LayTec GmbH, 2002, Die Daten stammen zum Teil aus der Literatur und zum Teil aus Messungen der Firma LayTec und der Technischen Universität Berlin.
- [280] T. Aschenbrenner, H. Dartsch, C. Kruse, M. Anastasescu, M. Stoica, M. Gartner, A. Pretorius, A. Rosenauer, T. Wagner, D. Hommel. *J. Appl. Phys.* **108**, 063533 (2010).

- [281] R. Butte, G. Christmann, E. Feltin, A. Castiglia, J. Levrat, G. Cosendey, A. Altoukhov, J. Carlin, N. Grandjean. *Proc. SPIE* 721619 (2009).
- [282] A. F. Jarjour, R. A. Taylor, R. A. Oliver, M. J. Kappers, C. J. Humphreys, A. Tahraoui. *Appl. Phys. Lett.* **91**, 052101 (2007).
- [283] M. Benyoucef, S. M. Ulrich, P. Michler, J. Wiersig, F. Jahnke, A. Forchel. *J. Appl. Phys.* **97**, 023101 (2005).
- [284] J. Kalden, C. Tessarek, K. Sebal, S. Figge, C. Kruse, D. Hommel, J. Gutowski. *Nanotechnology* **21**, 015204 (2010).

Veröffentlichungen und Tagungsbeiträge

Hier findet sich eine Auflistung aller Veröffentlichungen und Tagungsbeiträge während der Zeit der Promotion. Die Originalveröffentlichungen sind im Rahmen der Bearbeitung des Promotionsvorhabens erschienen und fassen jeweils einen Teil der in der vorliegenden Schrift erläuterten Ergebnisse zusammen.

Originalveröffentlichungen

- [O9] **Weak and strong coupling in ZnSe-Quantum Wells**
K. Sebald, M. Seyfried, S. Klemmt, C. Kruse, S. Bley and A. Rosenauer
Applied Physics Letters **100**, 161104 (2012).
- [O8] **Blue monolithic II-VI-based vertical-cavity surface emitting laser**
S. Klemmt, M. Seyfried, C. Kruse, K. Sebald, J. Gutowski, and D. Hommel
Applied Physics Letters **100**, 121102 (2012).
- [O7] **Optical properties of photonic molecules and elliptical pillars made of ZnSe-based microcavities**
K. Sebald, M. Seyfried, S. Klemmt, C. Kruse
Optics Express **19** No. 20, 19422-19429 (2011).
- [O6] **Properties of monolithic InGaN quantum dot pillar microcavities**
K. Sebald, M. Seyfried, J. Kalden, H. Dartsch, C. Tessarek, T. Aschenbrenner, S. Figge, C. Kruse, D. Hommel, M. Florian, F. Jahnke, and J. Gutowski
Physica Status Solidi (a) **208** No. 7, 1573-1575 (2011).
- [O5] **Composition mapping in InGaN by scanning transmission electron microscopy**
A. Rosenauer, T. Mehrkens, K. Müller, K. Gries, M. Schowalter, P. V. Satyama, S. Bley, C. Tessarek, D. Hommel, K. Sebald, M. Seyfried, J. Gutowski, A. Avramescu, K. Engl and S. Lutgen
Ultramicroscopy, **111**, 1316-1327 (2011).
- [O4] **Optical polariton properties in ZnSe-based planar and pillar structured microcavities**
K. Sebald, A. Trichet, M. Richard, Le Si Dang, M. Seyfried, S. Klemmt, C. Kruse, and D. Hommel
The European Physical Journal B **84** No. 3, 381-384 (2011).

- [O3] **Microphotoluminescence studies on GaN-based airpost pillar microcavities containing InGaN quantum wells and quantum dots**
K. Sebald, H. Lohmeyer, J. Kalden, M. Seyfried, S. Figge, C. Kruse, H. Dartsch, C. Tessarek, D. Hommel, and J. Gutowski
Physica Status Solidi (b), **248** No. 8, 1756-1764 (2011).
- [O2] **Strong phase separation of strained InGaN layers due to spinodal and binodal decomposition: the formation of stable quantum dots**
C. Tessarek, T. Aschenbrenner, S. Figge, S. Bley, A. Rosenauer, M. Seyfried, J. Kalden, K. Sebald, J. Gutowski, and D. Hommel
Physical Review B, **83** No. 11, 115316 (2011).
- [O1] **Optical Properties of InGaN quantum dots in monolithic pillar microcavities**
K. Sebald, M. Seyfried, J. Kalden, J. Gutowski, H. Dartsch, C. Tessarek, C. Kruse, D. Hommel, M. Florian, and F. Jahnke
Applied Physics Letters **96** No. 25, 2519006 (2010).

Tagungsbeiträge mit Veröffentlichung:

- [C5] **Optical properties of wide-bandgap monolithic pillar microcavities with different geometries**
M. Seyfried, J. Kalden, K. Sebald, C. Kruse, A. Gust, C. Tessarek, and D. Hommel, and J. Gutowski
10th International Workshop on Nonlinear Optics and Excitation Kinetics in Semiconductors - NOEKS, August 16-19, 2010 in Paderborn, Germany
Physica Status Solidi (c) **8**, No. 4, 1246-1249 (2011).
- [C4] **A (S)TEM and atom probe tomography study of InGaN**
T. Mehrstens, S. Bley, M. Schowalter, K. Sebald, M. Seyfried, J. Gutowski, S. Gerstl, P.-P. Choi, D. Raabe, and A. Rosenauer
17th International Conference on Microscopy of Semiconducting Materials 2011
June 7-11, 2011 in Strasbourg, France
Journal of Physics: Conference Series **326**, 012029 (2011).
- [C3] **Polarized light emission from CdSe/ZnSSe quantum-dot monolithic pillar microcavities**
M. Seyfried, J. Kalden, K. Sebald, A. Gust, C. Kruse, D. Hommel and J. Gutowski
6th International Conference on Quantum Dots – QD 2010
April 26-30, 2010 in Nottingham, UK
Journal of Physics: Conference Series **245**, 012058 (2010).

-
- [C2] **Manipulating the optical properties of CdSe/ZnSSe quantum dot based monolithic pillar microcavities**
M. Seyfried, J. Kalden, H. Lohmeyer, K. Sebald, C. Kruse, D. Hommel, and J. Gutowski
11th International Conference on Optics of Excitons in Confined Systems – OECS 11
September 7-11, 2009 in Madrid, Spain
Journal of Physics: Conference Series **210**, 012006 (2010).
- [C1] **Methods to spectrally tune II-VI-based monolithic microcavities**
K. Sebald, M. Seyfried, J. Kalden, H. Lohmeyer, C. Kruse, A. Gust, D. Hommel, and J. Gutowski
4th International Conference on II-VI Compounds, August 24-29, 2009 in St. Petersburg, Russia
Physica Status Solidi (b) **247** No. 6, 1539-1542 (2010).

Tagungsbeiträge ohne Veröffentlichung:

- [T15] **Influence of the pillar geometry on the emission properties of ZnSe-based monolithic microcavities**
K. Sebald, M. Seyfried, S. Klemmt, C. Kruse, D. Hommel, and J. Gutowski
12th International Conference on Optics of Excitons in Confined Systems – OECS 11
September 12-16, 2011 in Paris, France.
- [T14] **Blue monolithic vertical-cavity surface emitter lasing at 444 nm**
S. Klemmt, C. Kruse, M. Seyfried, K. Sebald, J. Gutowski, and D. Hommel
15th International Conference on II-VI Compounds – II-VI 2011
August 21-26, 2011 in Riviera Maya, Mexico.
- [T13] **Weak and strong coupling in ZnSe-based monolithic microcavities**
M. Seyfried, A. Trichet, M. Richard, Le Si Dang, S. Klemmt, C. Kruse, D. Hommel, and K. Sebald
15th International Conference on II-VI Compounds – II-VI 2011
August 21-26, 2011 in Riviera Maya, Mexico.
- [T12] **Composition mapping in InGaN with quantitative STEM Z-contrast imaging**
A. Rosenauer, T. Mehrkens, K. Müller, K. Gries, M. Schowalter, P.V. Satyam, S. Bley, C. Tessarek, D. Hommel, K. Sebald, M. Seyfried, J. Gutowski, S.S.A. Gerstl, Pyuck-Pa Choi, D. Raabe (*invited talk*)
9th International Conference on Nitride Semiconductors – ICNS9
July 10 - 15, 2011 in Glasgow, United Kingdom.

- [T11] **Enhancing the collection-efficiency of InGaN quantum dots in single photon emitters**
S. Figge, H. Dartsch, C. Tessarek, T. Aschenbrenner, C. Kruse, D. Hommel, K. Sebald, M. Seyfried, J. Kalden, J. Gutowski, M. Schowalter, K. Müller, A. Rosenauer, M. Florian and F. Jahnke
9th International Conference on Nitride Semiconductors – ICNS9
July 10 - 15, 2011 in Glasgow, United Kingdom.
- [T10] **Polariton scattering and strong coupling in ZnCdSSe-based monolithic microcavities**
K. Sebald, M. Seyfried, A. Trichet, M. Richard, Le Si Dang, S. Klemmt, C. Kruse, and D. Hommel
11th International Conference on Physics of Light-Matter coupling in Nanostructures – ICPLM11, April 4-8, 2011 in Berlin, Germany.
- [T9] **II-VI-based microcavities for the blue-violet spectral range**
S. Klemmt, C. Kruse, M. Seyfried, K. Sebald, J. Gutowski, and D. Hommel
European Workshop on Molecular Beam Epitaxy – Euro-MBE 2011
March 20-23, 2011 in L’Alpe d’Huez, France.
- [T8] **Optical properties of monolithic InGaN quantum dot pillar microcavities**
K. Sebald, M. Seyfried, J. Kalden, H. Dartsch, C. Tessarek, S. Figge, C. Kruse, D. Hommel, and J. Gutowski
Spring Meeting of the German Physical Society
March 13-18, 2011 in Dresden, Germany.
- [T7] **A (S)TEM and atom probe tomography study of InGaN**
T. Mehrstens, S. Bley, M. Schowalter, K. Sebald, M. Seyfried, J. Gutowski, S. Gerstl, P.-P. Choi, D. Raabe, A. Avramescu, and A. Rosenauer
Spring Meeting of the German Physical Society
March 13-18, 2011 in Dresden, Germany.
- [T6] **Optical properties of photonic molecules on base of the II-VI material system**
M. Seyfried, K. Sebald, A. Gust, C. Kruse, D. Hommel, and J. Gutowski
Spring Meeting of the German Physical Society
March 13-18, 2011 in Dresden, Germany.
- [T5] **Quantitative STEM: Composition mapping in InGaN**
A. Rosenauer, T. Mehrstens, K. Müller, K. Gries, M. Schowalter, S. Bley, P. Satyam, C. Tessarek, K. Sebald, M. Seyfried, J. Gutowski, A. Avramescu, K. Engl, and S. Lutgen
Spring Meeting of the German Physical Society
March 13-18, 2011 in Dresden, Germany.
- [T4] **Methods for polarized light emission from CdSe quantum dot based monolithic pillar microcavities**
M. Seyfried, J. Kalden, K. Sebald, J. Gutowski, C. Kruse, and D. Hommel
Spring Meeting of the German Physical Society
March 21-26, 2010 in Regensburg, Germany.

-
- [T3] **Threshold behaviour of green vertical-cavity surface-emitting lasers containing quantum dots or quantum wells**
C. Kruse, R. Retzlaff, M. Seyfried, K. Sebald, J. Kalden, J. Gutowski, J. Wiersig, F. Jahnke, and D. Hommel
14th International Conference on II-VI Compounds – II-VI 2009
August 24-29, 2009 in St. Petersburg, Russia.
- [T2] **Optical properties of GaN nanorods grown catalyst- and mask-free on r-plane sapphire**
J. Kalden, K. Sebald, M. Seyfried, T. Voss, J. Gutowski, T. Aschenbrenner, G. Kunert, C. Kruse, S. Figge, and D. Hommel
Spring Meeting of the German Physical Society
March 22-27, 2009 in Dresden, Germany.
- [T1] **Lifting of the fundamental cavity mode polarization degeneracy in CdSe/ZnSSe-quantum dot monolithic microcavities**
M. Seyfried, J. Kalden, K. Sebald, J. Gutowski, A. Gust, C. Kruse, and D. Hommel
Spring Meeting of the German Physical Society
March 22-27, 2009 in Dresden, Germany.

Lebenslauf

Persönliche Daten:

Dipl.-Phys. Moritz Seyfried
Geboren am 15. Februar 1982
in Balingen, Baden-Württemberg
verheiratet

universitäre Ausbildung:

seit 02/2012

Forschungsprojekt zur *Herstellung von ZnO Nanodraht-Leuchtdioden*

11/2011 – 12/2011

Projekt NanoSol: *Herstellung und Charakterisierung von ZnO Nanodraht-Dioden*

09/2008 – 10/2011

DFG-Projekt *Ausnutzung von Kopplungseffekten in II-VI-basierten monolithischen Mikrokavitäten für Laser geringer Schwelle*

Seit 09/2008

Wissenschaftlicher Mitarbeiter am Institut
für Festkörperphysik, AG Gutowski
Universität Bremen

06/2008

Abschluß: Diplom Physiker
Titel der Diplomarbeit:
Kapazitiv gepumpte organische Leuchtdioden
Betreuer: Prof. Dr. U. Lemmer

06/2006

Abschluß: Master of Physics in Optoelectronics and Lasers
Titel der Masterarbeit:
Thin-Film Characterisation and Photoluminescence Lifetime Measurements of Erbium-Doped Glass Films
Betreuer: Dr. A. K. Kar

09/2005 – 06/2006

Masterstudium der Physik
Heriot-Watt University
Edinburgh, Schottland

10/2002 – 06/2008

Diplomstudium der Physik
Karlsruhe Institute of Technology

schulische Ausbildung:

06/2001

Abitur
Leistungskurse: Physik, Mathematik

08/1988 – 06/2001

Besuch der Grundschule und des Gymnasiums, Balingen

Danksagung

Diese Arbeit wäre ohne die Unterstützung und Hilfe vieler Freunde und Kollegen nicht möglich gewesen. Daher möchte ich diese Gelegenheit nutzen, mich noch einmal herzlich zu bedanken. Dieser Dank geht besonders an...

...Prof. Dr. Jürgen Gutowski für die Möglichkeit diese Arbeit in seiner Arbeitsgruppe anfertigen zu können und die Übernahme des Erstgutachtens. Darüber hinaus führte sein stetes Interesse an den aktuellen Laborergebnissen zu hilfreichen Diskussionen und tieferen Einblicken in die Physik.

...Prof. Dr. Detlef Hommel für Anfertigung des Zweitgutachten dieser Arbeit und die Bereitstellung sämtlicher in dieser Arbeit verwendeten Proben durch seine Arbeitsgruppe, ohne welche diese Arbeit nicht möglich gewesen wäre.

...die weiteren Mitgliedern der Prüfungskommission: Prof. Dr. Wehling, Prof. Dr. Bergmann, Waldemar Freund und Linus Krieg.

...Dr. Kathrin Sebald für die hervorragende Betreuung während der letzten Jahre und die Einführung in die Eigenheiten verschiedensten Laboraufbauten. Auch möchte ich Ihr für die Simulationen danken, welche die experimentellen Ergebnisse um einen wichtigen Punkt ergänzten. Zudem gehört ihr ein großer Dank für das Korrekturlesen dieser Arbeit.

...PD. Dr. Tobias Voss für Einblicke in die Welt der Ultrakurzzeitsysteme sowie das Korrekturlesen dieser Arbeit.

...Dr. Carsten Kruse, Sebastian Klemmt und Arne Gust für die Herstellung der II-VI-basierten Proben auf welchen der Großteil dieser Arbeit angefertigt wurde sowie Dr. Stephan Figge, Dr. Christian Tessarek und Heiko Dartsch für die Bereitstellung der Nitrid-basierten Proben.

...die Arbeitsgruppe um Prof. Dr. Andreas Rosenauer, welche mit Ihren TEM-Ergebnissen zur Klärung einiger Fragestellungen beigetragen hat. Dabei möchte ich insbesondere Stephanie Bley hervorheben, welche während meiner Elternzeit die Strukturierung und Charakterisierung der Proben weiterführte.

...Dr. Joachim Kalden, Dr. Jan-Peter Richters, Andreas Schneider, Dongchao Hou, Dr. Apurba Dev, Waldemar Freund, Dr.-Ing. Abdelhamid ElShaer und alle weiteren Kollegen für die schöne Atmosphäre in der Arbeitsgruppe Halbleiteroptik.

...Gerd Ankele, welcher stets für Rat und insbesondere auch Tat hinsichtlich jeglicher technischer Sachverhalte im Labor helfend zur Seite stand.

...Annegret Ebert, ohne welche viel Arbeitszeit durch den täglichen Kampf im Bürokratie-Dschungel verloren gegangen wäre.

...die Kollegen der theoretischen Physik aus der Arbeitsgruppe von Prof. Dr. Jahnke. Insbesondere möchte ich Mathias Florian für die Simulationen zu den PL-Spektren der Nitrid-Säulenresonatoren danken, welche die experimentellen Arbeiten um einen wichtigen Punkt ergänzten.

...alle weiteren Kollegen des IFP und ITP der Universität Bremen, welche durch die stete Hilfsbereitschaft zu einer netten Arbeitsatmosphäre und kurzweiligen Momenten jenseits der Physik beigetragen haben.

...meinen Eltern für ihre langjährige Unterstützung und Ermutigung, durch welche mir dieser Weg erst möglich wurde.

...meine Frau Maike und unseren beiden Töchter, welche für die notwendige Abwechslung zur Physik sorgten und mich insbesondere während der letzten Monate mit aller Kraft unterstützt haben.